Série A. N°
N° d'ordre
440

# THÈSE

PRÉSENTÉE

## A LA FACULTÉ DES SCIENCES D'ORSAY
## UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

## LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES APPLIQUEES

PAR

**Matitiahu HALACHMY**

**CONTRIBUTION A L'ETUDE DU COMPORTEMENT DES PRODUITS DE FISSION DANS LES COMBUSTIBLES NUCLEAIRES PAR LA MESURE DES TENSIONS DE VAPEUR DES CONSTITUANTS DE $(UPu)O_2$ IRRADIE DANS UN FLUX DE NEUTRONS RAPIDES**

Soutenue le 23 janvier 1971, devant la Commission d'Examen

MM. LACOMBE — Président

COLLONGUES
PASCARD
LALLEMENT — Examinateurs

# THÈSE

PRÉSENTÉE

## A LA FACULTÉ DES SCIENCES D'ORSAY
## UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

## LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES APPLIQUEES

PAR

**Matitiahu HALACHMY**

**CONTRIBUTION A L'ETUDE DU COMPORTEMENT DES PRODUITS DE FISSION DANS LES COMBUSTIBLES NUCLEAIRES PAR LA MESURE DES TENSIONS DE VAPEUR DES CONSTITUANTS DE $(UPu)O_2$ IRRADIE DANS UN FLUX DE NEUTRONS RAPIDES**

Soutenue le 23 janvier 1971, devant la Commission d'Examen

| | | |
|---|---|---|
| MM. | LACOMBE | Président |
| | COLLONGUES | |
| | PASCARD | Examinateurs |
| | LALLEMENT | |

# FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

## PROFESSEURS

Doyen

M. ZAMANSKY

| | | |
|---|---|---|
| MM. | GRASSE | T Evolution des êtres organisés |
| | PREVOST | T Chimie organique |
| | WYART | T Minéralogie & cristallographie |
| | TEISSIER | T Zoologie |
| | AUGER | T Physique quantique & relativité |
| | MONNIER | T Physiologie générale |
| | PIVETEAU | T Paléontologie |
| | ROCARD | T Physique E.N.S. |
| | CARTAN | T Mathématiques E.N.S. |
| | LAFFITTE | T Chimie générale |
| | N... | T Géométrie supérieure |
| | COULOMB | T Physique du globe |
| | CRETIEN | T Chimie minérale |
| | BOCQUET | T Zoologie |
| | KASTLER | T Physique E.N.S. |
| | EPHRUSSI | T Génétique |
| | GAUTHERET | T Biologie végétale CPEM |
| | LUCAS R. | T Recherches physiques |
| | THOMAS A. | T Biologie |
| | MORAND | T Physique enseignement |
| | SOLEILLET | T Physique CPEM |
| | FORTIER | T Mécanique expérimentale des fluides |
| | DRACH | T Biologie maritime |
| | QUENEY | T Météorologie & dynamique de l'atmosphère |
| | GALLIEN | T Embryologie |
| Mlle | CAUCHOIS | T Chimie Physique |
| MM. | THELLIER | T Physique du Globe |
| | PONCIN | T Mécanique générale |
| | DUBREIL | T Arithmétique & Théorie des nombres |
| | GAGNIARD | T Géophysique appliquée |
| | CHAMPETIER | T Chimie macromoléculaire |
| | CUVILLIER | T Micropaléontologie |
| | TRILLAT | Microscopie & diffraction électronique |
| | WIEMANN | T Chimie organique & structurale |
| | VASSY | T Physique de l'atmosphère |
| | DESTOUCHES | T Théorie physique |
| | AMIEL | T Chimie générale |
| | MATHIEU J.P. | T Physique optique |
| | COUTEAUX | T Cytologie |
| | CHOQUET | T Théorie des fonctions & topologie |
| | FELDMANN | T Biologie végétale marine |
| | JOST | T Physiologie comparée |
| | FORTET | T Calcul des probabilités & physique math. |
| | SCHWARTZ | T Calcul différentiel & intégral |
| | CHOUARD | T Physiologie végétale |
| | MALAVARD | T Aviation (technique aéronautique) |
| | BRELOT | T Analyse supérieure |
| | EICHHORN | T Botanique |
| | BENARD | T Chimie appliquée |
| | DUGUE | T Statistique mathématique |
| | SOULAIRAC | T Psychophysiologie |
| | ULRICH | T Physiologie végétale appliquée |
| | KIRRMANN | T Théories chimiques |
| | CHADEFAUD | T Botanique |
| Mlle | LE BRETON | T Physiologie de la nutrition |
| MM. | LELONG | T Application de l'analyse à la géométrie |
| | DEVILLERS | T Anatomie camparée |
| | EHRESMANN | T Topologie algébrique |
| | FRANÇON | T Physique SPCN |
| | GLANGEAUD | T Géographie physique, géologie dynamique |
| | GODEMENT | T Mathématiques MGP |
| | PISOT | T Technique mathématiques de la physique |
| | ROCH | T Géologie |
| | SCHATZMANN | T Astrophysique |
| | TERMIER | T Géologie générale |
| | ZAMANSKY | T Mathématiques générales |
| | LENNUIER | T Physique M.G.P. |
| | ROUTHIER | T Géologie appliquée |
| Mme | TONNELAT | T Physique théorique |
| MM. | DIXMIER | T Mathématiques M.P.C. |
| | SOUCHAY | T Chimie générale |
| | AIGRAIN | T Electrotechnique |
| | BRUSSET | T Chimie systématique |
| | LEVY | T Physique théorique des hautes énergies |
| Mme | CHAIX | T Chimie biologique |
| Mme | HUREL PY | T Biologie végétale CPEM |
| MM. | PANNETIER | T Chimie générale I |
| | NORMANT | T Synthèse organique |
| | YVON | T Théories physiques |
| | COTTE | T Physique électricité |
| | DUBOIS J.E. | T Chimie organique physique |
| | LAMOTTE | T Zoologie E.N.S. |
| MM. | OLMER | T Energétique générale |
| | GAUTHIER | T Mécanique appliquée |
| | BARCHEWITZ | T Chimie physique |
| | BROSSEL | T Physique atomique |
| | BUSER | T Physiologie comparée |
| | CAMUS | T Physiologie végétale |
| | CURIEN | T Minéralogie & cristallographie |
| | POSSOMPES | T Zoologie |
| | PULLMANN | T Chimie quantique |
| | TEILLAC | T Physi. nucléaire & radioactivité |
| | VILLE | T Econométrie |
| | FREYMANN | T Recherches physiques |
| | ROLLET | T Chimie minérale |
| Mlle | JOSIEN | T Chimie SPCN |
| MM. | CHEVALLEY | T Géométrie alg. & théo. des groupes |
| | GERMAIN | T Mécan. Théo. des fluides |
| | LUCAS G. | T Géologie |
| | ALLARD | T Chimie physique |
| | BERTHELOT | T Physique des particules fonda. |
| | BRICARD | T Météorologie |
| Mme | ALBE-FESSARD | T Psycho-physiologie |
| MM. | JULIA | T Etude des molécules nat. com. |
| | MAGAT | T Physico-chimie des rayonnements |
| | MONOD | T Chimie du métabolisme |
| | BRUN | T Mécanique des fluides I |
| Mme | DUBREIL | T Mathématiques (Agrégation) |
| Mme | LELONG | T Mathématiques II E.N.S. |
| MM. | BELLAIR | T Géologie S.P.C.N. |
| | BOUISSIERES | T Radiochimie |
| Mme | COUTURE | T Thermodynamique & mécan. Biologie animale CPEM |
| MM. | FRANC | T Botanique tropicale |
| | SCHNELL | T Physiologie générale |
| | STOLKOWSKI | T Chimie biologique |
| | ACHER | T Biologie animale CPEM |
| | BAUDOIN | Biologie animale SPCN |
| | BEAUMONT | Géophysique ionosphère |
| | BLAMONT | T Botanique |
| | BOUREAU | Physique MGP |
| | CURIE D. | T Géologie |
| | DURAND DELGA | T Physiologie végétale |
| | HELLER | T Calcul des probabilités |
| | TORTRAT | T Géologie SPCN |
| | CAILLEUX | T Physique électricité |
| | MAGNAN | T Mécanique ondulatoire |
| | DAUDEL | T Mécanique analytique et mécanique céleste |
| Mme | CHOQUET | T Physiologie générale |
| | BRUHAT | T Microbiologie |
| Mlle | VEIL | T Mécan. Phys. et expérimentale |
| MM. | LWOFF | T Mécanique théorique |
| | SIESTRUNCK | T Géo. phys. & géo. dynamique |
| | CABANNES | T Mécanique des fluides |
| | CAIRE | T Physique de l'exosphère |
| | COMOLET | T Biologie animale |
| | DELLOUE | T Anthropologie |
| | HOUILLON | T Math. (ENS jeunes filles) |
| | OLIVIER | T Analyse numérique |
| | SAMUEL | T Chimie analytique |
| | DE POSSEL | T Chimie CPEM |
| | CHARLOT | T Physique SPCN |
| | CHATELET | T Géologie |
| | MATTLER | T Physi. nucléaire & radio-act. |
| | AUBOUIN | Bio. vég. marine Villefranche s/mer |
| Mme | BENOIT-GEUTAL | T Chimie SPCN |
| MM. | BOUGIS | T Chimie appliquée |
| | RIGAUDY | Biochimie |
| | COLLONGUES | T Physique fondamentale |
| | DUBERT | Chimie organique |
| | NOZIERES | T Océanographie physique |
| | CADIOT | Zoologie |
| | IVANOFF | Génie chimique |
| | FRANÇOIS | Botanique |
| | TALBOT | T Mathématiques MPC |
| Mme | NOUGAREDE | Electricité générale |
| MM. | BRUHAT | T Math. propédeutique |
| | FOURNET | T Géologie SPCN |
| | DEHEUVELS | T Génétique |
| | FURON | Biologie végétale CPEM |
| Mme | GANS | T Pétrographie |
| MM. | GENEVES | T Biologie générale |
| | HUPE | T Analyse numérique |
| | HOLLANDE | T Chimie organique |
| | LIONS | |
| | MAITTE | |
| MM. | NICOLAS | Géologie appliquée |
| | PANIGEL | Biologie générale |
| | RAVIER | T Pétrographie |
| | MOREL F. | T Physiologie comparée |
| | ROSEAU | T Mécan. théorique des fluides |
| | ROUBINE | T Electronique E.S.E. |
| | SILBER | T Chimie CPEM |
| | UEBERSFELD | T Electronique |
| | THIRY | T Mécanique céleste |
| | ABELES | T Physique SPCN |
| | AMAT | T Thermodynamique |
| | BALKANSKI | Physique M.P.C. |
| | LE CORRE | T Electricité |
| | NATAF | T Physique nucléaire & radio-act. |
| | ECHALIER | Biologie animale CPEM |
| | BARRAUD | T Physique CPEM |
| | DARS | Géo. structurale & appliquée |
| | CAMEFORT | Botanique (agrégation) |
| | VICHNIEWSKY | T Mécan. industrielle |
| | SIGWALT | Chimie SPCN |
| | BLAQUIERE | Automatique |
| | BARUCH | Physique propédeutique |
| | ARNOUS | T Physique théorique |
| | SLONINSKI | Génétique |
| | MALLIAVIN | T Math. propédeutique |
| | GAUDEMAR | Chimie propédeutique |
| | BROUSSE | T Mécanique théorique |
| | ROSCH | T Astronomie |
| | GUY | T Physique expérimentale |
| | LAZARD | T Mathématiques MPC |
| | MOREL P. | Physique MPC |
| | ARSAC | Programmation |
| | LEFEBVRE | T Chimie MPC |
| | BOK | Physique fondamentale |
| | CHAPEVILLE | Biochimie |
| | BENOIT | Physique CPEM |
| | RIOT | Chimie CPEM |
| | JAUZEIN | Géologie ENS |
| | PREVOST G. | Biologie cellulaire |
| | FAVARD P. | Biologie animale CPEM |
| Mme | CHARNIAUX-COTTON | Evol. des êtres organisés |
| Mlle | FICINI | Chimie CPEM |
| MM. | LEQUEUX | Astronomie |
| | COHEN TANNOUDJI | Physique atomique |
| | HERVE | T Mathématiques |
| Mme | PECKER-WIMEL | T Astrophysique |
| MM. | TAVERNIER | Physique PC |
| | DURAND M. | Biologie animale SPCN |
| | PASCAUD | Physiologie |
| Mme | PETIT | Biologie animale CPEM |
| MM. | CAGNAC | Electricité |
| | FALK-VAIRANT | Physique nucléaire |
| | KRASNER | T Mathématiques |
| | BENZECRI | T Statistiques |
| | VINH MAU | Physique M.G.P. |
| | DUQUESNES | Physique CPEM |
| | SCHUTZENBERGER | T Programmation |
| | TREMILLON | Chimie MPC |
| | FAYARD | Chimie MPC |
| | BUVET | Chimie CPEM |
| | AUTHIER | Minér. et cristallographie |
| | BONNEFILLE | Electrotechnique |
| Mme | PUISEUX DAO | Biologie végétale |
| M. | BERGER | T Géométrie supérieure |
| Mlle | LIBERMANN | T Mathématiques |
| MM. | DEDONDER | T Biologie cellulaire |
| | DUFOUR | T Electronique I.U.T. |
| | SCHAAL | Chimie CPEM |
| | BAUCHOT | Anatomie comparée |
| | LANCE | BV CPEM |
| | GIRAUD | Botanique E.N.S. |
| | HULIN | Physique PC |
| | VIGIER | Génétique |
| | GUERN | Biologie végétale |
| | SLODZIAN | Physique CPEM |
| | LACOMBE | Logique mathématique |
| | TAVLITZKI | Biologie cellulaire |
| | ARVIEU | Physique CPEM |
| | TAXI | B.A. CPEM |
| | COLLENOT | B.A. CPEM |
| | BASSELIER | Chimie propédeutique |
| | BADOUAL | Electronique I.U.T. |

Le Secrétaire Général

R. POULLAIN

UNIV. LEIDEN BIB.

REMERCIEMENTS

Ce travail a été effectué au Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses dans les laboratoires du Service du Plutonium (Section d'Etudes des Céramiques à base de Plutonium et Section du Plutonium Irradié).

Je remercie le C.E.A. de m'avoir accueilli et autorisé à travailler dans les laboratoires et particulièrement Messieurs SEBILLEAU et MUSTELIER.

J'exprime toute ma gratitude à Monsieur LACOMBE, Professeur à la Faculté des Sciences d'Orsay pour avoir bien voulu accepter de diriger cette thèse et m'avoir fait l'honneur de présider ce jury.

Monsieur le Professeur COLLONGUES, Monsieur PASCARD et Monsieur LALLEMENT m'ont fait l'honneur de participer à ce jury ; je les prie d'être assurés de ma respectueuse reconnaissance.

J'ai plaisir à remercier chaleureusement Monsieur MARIN et Monsieur LALLEMENT, Chefs de Section, pour l'aide, les conseils et l'intérêt qu'ils m'ont apportés.

J'ai bénéficié au cours de ces recherches et lors de la rédaction de ce mémoire du précieux soutien et de la grande expérience de Monsieur SCHMITZ. Je tiens à lui témoigner ma profonde gratitude.

Je prie tout le personnel du laboratoire de trouver ici l'expression de ma reconnaissance pour leur collaboration et l'ambiance amicale que j'ai rencontrée tout au long de mon séjour.

"Last but not least", je remercie le Commissariat à l'Energie Atomique d'ISRAEL, et particulièrement l'Administration du Centre de Recherche Nucléaire NEGEV, qui ont bien voulu m'accorder la bourse qui m'a permis de mener cette étude à son terme.

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41556011_0006

TABLE DES MATIERES


1ère Partie : pages

L'EVOLUTION EN COURS D'IRRADIATION DE COMBUSTIBLE A BASE D'OXYDES MIXTES D'URANIUM ET DE PLUTONIUM

INTRODUCTION 1

Chapitre I - EVOLUTION DE LA COMPOSITION CHIMIQUE SOUS IRRADIATION 4

I.1 Formation des produits de fission 4

I.2 Formation des produits de capture 6

I.3 Application au calcul de la composition du combustible irradié 7

Chapitre II - EQUILIBRES THERMODYNAMIQUES DANS LE SYSTEME URANIUM-PLUTONIUM-PRODUITS DE FISSION-OXYGENE 10

II.1 Classification des produits de fission par potentiel d'oxydation 11

II.2 Bilan d'oxygène 12

II.3 Répartition des produits de fission dans les différentes phases du combustible 14

Chapitre III - EFFETS DU GRADIENT THERMIQUE EN COURS D'IRRADIATION 17

Chapitre IV - SIMULATION D'UN COMBUSTIBLE IRRADIE: DESCRIPTION ET RESULTATS 19

IV.1 Fabrication, aspect micrographique et comportement à haute température 19

IV.2 Analyse des phases par microsonde 21

IV.3 Evolution du rapport oxygène/métal d'après les mesures de rayons X 22

2ème Partie :

ETUDE DE LA PHASE VAPEUR D'UN COMBUSTIBLE


Chapitre I - MESURES DE TENSION DE VAPEUR 25

I.1 Base thermodynamique 25

I.2 Méthode d'effusion de Knudsen 27

I.3 Application à l'étude du combustible irradié 29

Chapitre II - APPAREILLAGE ET PROCEDURE EXPERIMENTALE 34

II.1 Appareil d'effusion

II.2 Protection biologique et télémanipulateur 36

II.3 Installation d'analyse par spectrométrie 37

II.4 Procédure expérimentale 39

Chapitre III - RESULTATS EXPERIMENTAUX DE TENSIONS DE VAPEUR 40

III.1 Description de l'échantillon 40

III.2 Protocole expérimental 41

III.3 Résultats de tensions de vapeur des différents éléments 41

III.3.1 Tension de vapeur des éléments dosés par leur rayonnement alpha 42

III.3.2 Tension de vapeur des éléments dosés par leur rayonnement gamma 48

III.3.3 Dosage par comptage du rayonnement bêta 53

III.4 Synthèse des résultats et discussion 55

CONCLUSION 57

BIBLIOGRAPHIE 59

# PREMIERE PARTIE

# L'EVOLUTION EN COURS D'IRRADIATION DE COMBUSTIBLE A BASE D'OXYDES MIXTES D'URANIUM ET DE PLUTONIUM

# INTRODUCTION

Les besoins en énergie, continuellement croissants dans le monde, nécessitent la construction de centrales nucléaires qui doivent être compétitives vis-à-vis des centrales classiques.

Actuellement, il existe un certain nombre de types de réacteurs thermiques, parmi lesquels plusieurs produisent de l'énergie de manière compétitive en utilisant seulement les ressources naturelles de matière fissile. Dans l'état de croissance actuelle des besoins de consommation, ces centrales thermiques de la première génération des réacteurs de puissance auraient consommé vers 1985 tout l'uranium provenant des ressources qui peuvent être exploitées à un prix raisonnable.

La formation de plutonium dans les réacteurs thermiques et son utilisation à des fins pacifiques, a soulevé un grand intérêt dans la construction de réacteurs avancés, qui peuvent consommer les ressources naturelles d'une façon plus économique. En outre, grâce à la découverte que, dans un réacteur à flux rapide, davantage de matière fissile est produite, par la conversion de $^{238}U$ en $^{239}Pu$, qu'il n'en est consommé par la combustion, ce type de réacteur semble aujourd'hui répondre aux futures exigences énergétiques.

Actuellement, le combustible constitué d'oxydes mixtes à base d'uranium et de plutonium à refroidissement par le sodium liquide, a été choisi pour la première génération de réacteurs rapides [1]. Par comparaison avec les réacteurs thermiques, qui ne peuvent utiliser plus de 1 à 2 % de leur charge de combustible, les réacteurs rapides sont conçus pour atteindre une combustion de l'ordre de 10 %.

Cette combustion, qui est équivalente à environ 100.000 MWj/t (U+Pu) initial, entraîne l'apparition au sein du combustible d'une concentration en produits de fission de l'ordre de 20 % atomique par rapport au combustible initial.

La formation de ces impuretés à forte concentration se passe à très haute température et dans un très fort gradient thermique. Des composés nouveaux se forment alors, et il est évident que toute caractéristique initiale du combustible peut changer considérablement en cours d'irradiation. Ainsi, dans le développement du combustible, le rôle des produits de fission doit être pris en compte. Or, jusqu'ici, les prévisions des propriétés et du comportement du combustible sous irradiation sont établies sur la base des connaissances relatives au composé initial.

Les analyses du combustible irradié qui ont été faites se sont généralement limitées à la détermination des constituants du combustible et à leur répartition (micrographie, autoradiographie, microanalyse X), très peu de travaux discutent le caractère physico-chimique du combustible résultant de l'interaction entre le combustible et les produits de fission. Le présent travail a ainsi pour but de contribuer à la connaissance de l'influence des produits de fission sur les propriétés du combustible. Pour cela, l'étude de la vaporisation du combustible irradié a été adoptée comme voie principale. Cette méthode permet d'étudier, dans le système (U-Pu-PF (produits de fission)-O) à la fois l'état chimique des produits de fission, leur concentration suivant l'emplacement de l'échantillon dans le combustible et leur influence sur les propriétés thermochimiques du système initial U-Pu-O. De plus, la connaissance de la composition de la phase vapeur et des pressions partielles des différents constituants en équilibre avec la phase solide, apporte des indications importantes sur la composition de la phase condensée et sur le phénomène de migration des constituants du combustible par le processus d'évaporation-condensation.

Dans une première partie, nous décrivons et discutons l'état d'un combustible oxyde après irradiation à partir des données nucléaires et thermodynamiques dont nous disposons. En particulier, ces résultats sont confrontés avec une expérience dans laquelle

un composé simulant l'état chimique d'un combustible irradié a été élaboré et examiné.

Après quelques rappels concernant les méthodes de mesure des tensions de vapeur, la deuxième partie expose les études relatives à la réalisation de l'appareil construit pour effectuer ces mesures sur des échantillons de combustible irradié ; on présente ensuite les résultats obtenus sur un échantillon d'oxyde mixte d'uranium et de plutonium irradié à un fort taux de combustion sous un flux de neutrons rapides. Enfin, ces résultats sont discutés et des perspectives d'utilisation de l'appareillage sont suggérées.

# CHAPITRE I

## EVOLUTION DE LA COMPOSITION CHIMIQUE SOUS IRRADIATION

La fission d'atomes d'uranium et de plutonium présents dans les combustibles nucléaires engendre des produits de fission. D'autre part, la capture neutronique entraîne la formation d'éléments artificiels de la famille des actinides. Ainsi, ces deux phénomènes, provoqués par le flux de neutrons du réacteur, modifient la nature du combustible irradié, dont la composition finale est déterminée par le flux total intégré et l'énergie moyenne des neutrons.

### I.1 Formation des produits de fission

En moyenne, chaque fission crée deux atomes de produits de fission, le noyau de l'atome fissile étant fissionné en deux fragments inégaux. La courbe fixant la probabilité de formation du fragment de fission en fonction de sa masse, présente une forme bien connue, avec deux maxima de même importance, la probabilité de formation de deux produits de fission de masse égale étant minimum. Pour un atome fissile donné, ce minimum est fonction de l'énergie des neutrons, de sorte que l'écart entre le minimum de la courbe et les maxima décroît quand l'énergie des neutrons augmente [2].

Si l'on compare les courbes relatives de fission des atomes les plus importants, on constate, en passant de $^{235}U$ à $^{239}Pu$, que le premier maximum se déplace vers les masses plus élevées, tandis que le deuxième reste pratiquement inchangé [2].

Cette différence dans le spectre des produits de fission devient importante dans les combustibles d'oxydes mixtes d'uranium et de plutonium, étant donné que le déplacement mentionné se traduit par une augmentation considérable de la concentration en éléments nobles. Le choix initial du rapport Pu/U+Pu et de l'enrichissement en $^{235}U$ dans la conception du combustible d'un réacteur rapide affectera donc de façon importante les caractéristiques du combustible en cours d'irradiation.

Au moment de leur formation, les deux fragments de fission sont très instables à cause d'un excès en neutrons. Ils sont alors soumis aux processus de désintégration beta pour aboutir à des noyaux stables ou de longue période. Pendant l'irradiation il existe ainsi un équilibre entre la formation et la désintégration d'un nuclide déterminé. Après l'arrêt du réacteur, la concentration d'équilibre de ce nuclide est uniquement déterminée par la décroissance radioactive.

La probabilité de formation d'un fragment de fission est appelée "rendement indépendant de fission" et représente sa contribution aux 200 atomes créés par 100 fissions. Le rendement global d'un produit de fission après un temps t d'irradiation est déterminé par son rendement indépendant, la contribution par décroissance des précurseurs et par sa propre décroissance.

Les rendements de fission sont donnés dans la littérature. Dans la plupart des cas, on donne les valeurs indépendantes [3, 4] ; d'autres auteurs calculent les rendements globaux pour différents temps d'irradiation et de refroidissement [5, 6].

En général, la période des précurseurs instables est si courte que leur rendement indépendant peut être ajouté au rendement du premier isobare relativement stable. En fait, le cas courant est celui d'une filiation qui aboutit directement à un nuclide stable. Dans les autres cas, au maximum deux nuclides de période moyenne précédent leur isobare stable de fin de chaîne et forment un équilibre.

Dans le cas le plus simple, la concentration d'un produit de fission stable par unité de volume de combustible est donné par :

$$N_i = r_i F$$

où $N_i$ = nombre d'atomes du produit de fission par unité de volume.

$r_i$ = rendement du produit de fission

$F$ = nombre de fissions par unité de volume.

La concentration du produit de fission de période moyenne, précurseur immédiat de l'isobare stable, est donnée par :

$$N_{i-1} = \frac{r_{i-1} F}{\lambda_{i-1}} (1-e^{-\lambda_{i-1} t})$$

où $\lambda_i$ = constante de décroissance

$t$ = temps d'irradiation.

Les équilibres plus complexes sont décrits par les formules de RUTHERFORD [7].

## I.2 Formation des produits de capture

Des réactions nucléaires par capture neutronique conduisent à la formation d'éléments transuraniens. La figure 1 montre le schéma principal de formation des différents isotopes transuraniens. Dans le tableau 1, les sections efficaces de capture les plus importantes sont données.

Parmi ces réactions de capture, celle qui présente la plus grande importance, concerne la formation de $^{239}Pu$ à partir de $^{238}U$, suivant le schéma :

$$^{238}U \xrightarrow{(n,\gamma)} {}^{239}U \xrightarrow[23,5\ min]{\beta^-} {}^{239}Np \xrightarrow[2,35\ j]{\beta^-} {}^{239}Pu$$

Cette chaîne de formation est à l'origine de la conception des réacteurs surrégénérateurs à neutrons rapides. Dans les réacteurs à combustible de (U+Pu) nous avons en même temps combustion du plutonium et formation à partir d'uranium. Ainsi, dans un combustible de ce genre, la concentration en uranium par unité de volume de combustible peut diminuer plus rapidement que celle du plutonium. Cela dit, on peut comprendre, comme le montrent quelques résultats de calcul (voir I.3)que le rapport Pu/U+Pu reste pratiquement constant au cours de la combustion.

La concentration en éléments transuraniens dans le combustible d'un réacteur rapide est élevée. L'activité spécifique élevée du rayonnement alpha d'isotopes d'américium et de curium et le fait que nos dépôts de vapeur sont particulièrement adaptés à la spectrométrie alpha, nous ont permis de mesurer la concentration de ces éléments.

Le changement de concentration des produits de fission dû au processus de capture neutronique est tout à fait négligeable ; les sections efficaces de capture des produits de fission dans un flux rapide étant faibles, leur formation par fission reste donc prépondérante. Exceptionnellement, le processus de capture peut créer un nuclide qui n'est pas un produit de fission et qui nous offre ainsi un moyen supplémentaire pour suivre l'évolution et le caractère chimique de l'élément formé. Cette étude a été effectuée dans le cas du césium : nous avons ainsi mesuré l'activité de Cs-137 (produit de fission) et de Cs-134 (produit de capture de Cs-133).

## I.3 Application au calcul de la composition du combustible irradié

La concentration soit en atomes lourds soit en produits de fission, détermine les propriétés du combustible à un taux de combustion donné.

Le calcul quantitatif de la composition du combustible irradié nécessite la connaissance des données suivantes :

1) La composition isotopique initiale
2) Le nombre de fissions par unité de volume
3) La durée de l'irradiation
4) L'énergie moyenne du flux de neutrons

L'énergie moyenne des neutrons fixe les sections efficaces de fission et de capture des atomes lourds et a, comme nous l'avons dit, une influence sur le spectre de produits de fissions.

Par la suite, nous donnons les résultats de calculs pour cinq cas qui représentent différentes compositions initiales et différents modes d'irradiation. La composition finale en produits de fission est la somme des contributions partielles des différents atomes fissiles. Si les sections efficaces de fission et de capture sont bien connues pour tous les nuclides en question [8,9,10], les spectres de produits de fission sont connus seulement pour $^{235}U$, $^{238}U$ et $^{239}Pu$ [3, 11]. Pour les autres atomes fissiles ($^{240}Pu$, $^{241}Pu$, $^{242}Pu$), nous admettons que les rendements de fission de leurs produits de fission sont ceux de $^{239}Pu$.

Nous avons tenu compte dans nos calculs de la variation du spectre de produits de fission avec l'énergie moyenne des neutrons, en interpolant entre les données correspondant aux neutrons thermiques d'une part, aux neutrons de 1 MeV, d'autre part.

Les paramètres concernant les combustibles de type I à V figurent dans les tableaux 2 et 3.

Les hypothèses de calcul de l'évolution sont les suivantes :

- Les sections efficaces ne varient pas au cours de l'irradiation.
- Tous les nuclides fissiles ont une énergie de fission telle que 1 W = $3.1 \times 10^{10}$ fission/s.
- Le nombre de fissions par unité de volume et unité de temps est constant : ainsi la diminution de la densité en matière fissile doit être compensée par une augmentation du flux.

Nous exprimons le taux de combustion en % (TCF) comme le rapport du nombre total de fissions au nombre initial d'atomes lourds.

A l'exception de combustible de type I, tous les calculs ont été effectués à l'aide d'un programme de calcul [12, 13]. Les évolutions des atomes lourds sont résumées dans le tableau 4. Elles sont exprimées par le rapport atomique de Pu/U et Pu/U+Pu, sans tenir compte de la composition isotopique.

Dans l'évolution des produits de fission, nous avons calculé les concentrations relatives de 160 nuclides. Ces nuclides déterminent les concentrations de 33 éléments principaux de fission entre z = 34 et z = 66. Ces nuclides sont présentés dans le tableau 5.

Les rendements des produits de fission du combustible I ont été calculés d'après les données d'ANDERSON [4] pour $^{239}Pu$ ; la contribution de $^{235}U$ provient des travaux de BURRIS et al [6] et de BOLLES et al [5]. Les paramètres des chaînes de désintégration sont ceux de KATKOFF [14] partiellement réajustés sur la base du rapport de CROCKER [15]. Le tableau 6 présente les rendements après 5,98 % atomique TCF ; il donne une vue générale sur les rendements de différents nuclides en fonction de leur origine : fission de $^{239}Pu$ ou fission de $^{235}U$. Les concentrations correspondantes, exprimées en ppm atomiques par rapport au nombre initial d'atomes de (U+Pu), sont présentées dans le tableau 7 et dans la figure 2. Les autres calculs sont basés sur les données de MEEK et al [3] et celles de CROCKER. Ils sont présentés dans les tableaux 8, 9 et 10.

On notera la stabilité du rapport Pu/U+Pu dans tous les cas calculés. C'est un résultat très intéressant car les changements probables dans le caractère du combustible deviennent ainsi des fonctions propres de l'évolution des produits de fission. La concentration des produits de fission augmente linéairement avec le taux de combustion lorsque l'irradiation dépasse une durée de l'ordre de 100 jours (voir figure 3). La différence entre un combustible d'oxydes mixtes à base d'uranium naturel et celui à base d'uranium enrichi est montrée dans la figure 4.

# CHAPITRE II

## EQUILIBRES THERMODYNAMIQUES DANS LE SYSTEME URANIUM-PLUTONIUM-PRODUITS DE FISSION-OXYGENE

Dans un combustible à base d'oxyde mixte, la fission des atomes d'uranium et de plutonium libère de l'oxygène, ce qui constitue un troisième paramètre gouvernant les changements de composition chimique au cours de l'irradiation. Ce phénomène se manifestant à des températures élevées, toute réaction qui forme dans le système un composé thermodynamiquement stable, peut donc se produire.

Les oxydes d'uranium et de plutonium forment des solutions solides avec de larges domaines d'homogénéité correspondant à la formule $MO_{2\pm x}$, dont la structure cristalline est du type $CaF_2$. Pour la composition stoechiométrique O/M = 2,00, la loi de VEGARD est vérifiée dans tout le domaine de compositions $(U_{1-y}Pu_y)O_{2,00}$ où $0 < y < 1$ (réf. 16).

Dans le cadre de l'application des oxydes mixtes aux réacteurs nucléaires, on peut se limiter à l'étude des composés où Pu/U+Pu < 30 % et qui sont dans le domaine sous-stoechiométrique : O/M < 2,00. Dans ces composés, le paramètre cristallin varie linéairement entre la composition stoechiométrique et celle de la limite de réduction, où tout le plutonium est trivalent et l'uranium est tétravalent [17], la diminution de la concentration en oxygène provoquant une dilatation du réseau cristallin. La droite de variation du paramètre en fonction de O/M, a = f(O/M) est fréquemment utilisée pour la détermination de la stoechiométrie

de $(U_{1-y}Pu_y)O_{2-x}$. D'autre part, les travaux de MARKIN et al [18] ont établi les conditions de traitement standard permettant d'obtenir l'état stoechiométrique de l'oxyde mixte, qui est à la base de la détermination du rapport O/M par gravimétrie.

L'état chimique des produits de fission est déterminé par le potentiel d'oxydation de la matrice $(UPu)O_{2-x}$. Celui-ci varie de manière considérable en fonction du rapport O/U+Pu [19]. RAND et al ont montré que dans le domaine sous-stoechiométrique, l'énergie molaire partielle de l'oxygène :

$$\overline{\Delta F}_{O_2} = - RT \log P_{O_2}$$

est uniquement fonction de la valence moyenne $\bar{v}$ du plutonium ($3 < v < 4$) et ils ont ainsi conclu que le système se comporte comme une solution idéale.

## II.1 Classification des produits de fission par potentiel d'oxydation

Pour classer l'ensemble des produits de fission, on compare leur potentiel d'oxydation à celui de la matrice d'oxyde mixte. Nous admettons ainsi que c'est la formation (ou la non formation) d'oxydes de produits de fission qui détermine l'état chimique final du combustible irradié.

Dans la figure 5 sont présentés les potentiels d'oxydation des éléments qui composent le combustible irradié, exprimés par $\Delta\bar{G}(O_2)$ [20,21]. Trois courbes représentent les oxydes mixtes sur cette figure. Ces courbes correspondent respectivement à l'oxyde stoechiométrique, à un état légèrement oxydé ($U^{+4.002}$) et à la stoechiométrie limite de réduction, donnée par la formule $(U_{1-y}Pu_y)O_{2-y/2}$. La figure 5 peut s'exploiter commodément dans l'étude du système polyphasé U-Pu-PF-O, en lui adjoignant les échelles qui permettent de trouver les atmosphères d'équilibre de différents oxydes, en fonction de la température et du potentiel d'oxydation.

La figure 5 permet ainsi de classer les produits de fission en deux groupes :

- Le premier groupe contient les éléments qui ne s'oxydent pas dans le domaine de température compris entre les températures de surface (Ts) et à coeur (Tc) de l'aiguille de combustible (Ts $\sim$ 600°C, Tc $\sim$ 2300°C). Dans ce groupe, on trouve les éléments de fission suivants : Se, Br, Kr, Rb, Mo, Tc (Re), Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In, Sn, Sb, Te, I, Xe, Cs.

- Le deuxième groupe est formé par les éléments dont le potentiel d'oxydation est toujours plus négatif que celui de l'oxyde mixte $(UPu)O_{2\pm x}$. Ce groupe comprend les éléments : Sr, Y, Zr, Nb, Ba, ainsi que tous les métaux de terres rares : La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Dy.

Dans certains cas, des éléments peuvent passer d'un groupe à l'autre, suivant la température et le rapport O/(U+Pu) de l'oxyde mixte. C'est notamment le cas des éléments Mo et Nb. La fonction $\Delta\bar{F}(O_2) = f(T°K)$ du molybdène est très voisine des valeurs correspondant à l'oxyde mixte stoechiométrique $(UPu)O_{2,00}$, et, dans le domaine de température qui nous intéresse, ces fonctions ont un point d'intersection. Ainsi pour un combustible dont le rapport O/U+Pu est très proche de 2,00, il existe une température au-dessus de laquelle le molybdène est à l'état métallique et au-dessous de laquelle il est oxydé [19]. Le niobium est le seul élément dont la courbe $\Delta\bar{F}_{O_2}$ (T) d'oxydation est située dans le domaine des oxydes mixtes sous-stoechiométriques. Mais la stoechiométrie d'un combustible est en général telle que le niobium doit figurer parmi les éléments qui s'oxydent.

Ce classement est fait avec l'hypothèse que la présence des produits de fission ne change pas le potentiel d'oxydation de l'oxyde mixte $(UPu)O_{2\pm x}$.

## II.2 Bilan d'oxygène

La classification des produits de fission nous permet

d'établir un bilan d'oxygène et de suivre son évolution en cours d'irradiation.

Comme il est admis que les oxydes les plus stables se forment, nous pouvons attribuer à chaque élément de fission une valence chimique (tableau 11) : ceci nous permet de calculer une valence moyenne des produits de fission [22, 23], suivant la formule :

$$\bar{V} = \frac{\Sigma\, n_i\, V_i}{\Sigma\, n_i}$$

où : $\bar{V}$ est la valence moyenne de chaque PF
$n_i$ le nombre d'atomes de produits de fission (i) formés
$v_i$ la valence du produit (i) dans le système (U-Pu-PF-O)

La valeur de $\Sigma\, n_i\, v_i$ peut être considérée comme le nombre total d'électrons transférés dans les réactions d'oxydation.

Nous admettons dans nos calculs que la quantité d'oxygène libérée par la fission de chaque atome d'uranium ou de plutonium correspond à la stoechiométrie initiale $S_i$ de l'oxyde mixte. Comme deux produits de fission remplacent un atome fissile, on compare $2\,\bar{v}$ à la valence moyenne d'un atome fissile. Considérant seulement le cas où le molybdène n'est pas oxydé, on trouve toujours que $\bar{v} < S_i$ (tableau 12). Au cours de l'irradiation, de l'oxygène est ainsi disponible pour oxyder la matrice ; la variation du rapport O/(U+Pu) est donnée par la relation :

$$\Delta\ (O/(U+Pu)) = \frac{\tau(s-\bar{v})}{100-\tau}$$

où $\tau$ est le taux de combustion exprimé en % TCF.

Le tableau 12 montre quelques valeurs numériques concernant le bilan d'oxygène dans les combustibles des types I à V qui ont été traités dans le chapitre I.3. Ce tableau met en évidence la différence entre les combustibles dont l'enrichissement en $^{235}U$ est différent.

## II.3 Répartition des produits de fission dans les différentes phases du combustible

La classification des produits de fission et la redistribution de l'oxygène libéré entre l'oxyde mixte et les produits de fission nous permet déjà de prévoir la formation de différentes phases. Nous pouvons par ailleurs nous appuyer sur de nombreux résultats, publiés dans la littérature, d'examens de combustible après irradiation.

L'examen métallographique des oxydes mixtes irradiés met clairement en évidence des inclusions brillantes qui se trouvent généralement dans les joints de grains [24, 25]. La connaissance détaillée de leur composition a été acquise à l'aide de la microanalyse X [26,27,28,29,30,31] et, complémentairement, de la microanalyse chimique [27, 29] effectuée soit sur le combustible irradié, soit sur des simulations de combustible irradié (voir chapitre IV). Pour un grand nombre d'éléments, cependant, ces analyses ne sont pas quantitatives et on est obligé de se servir des données connues sur les systèmes ternaires [32, 33] et de l'analyse thermodynamique (chapitre II.1) pour établir une théorie cohérente concernant la répartition des produits de fission dans les différentes phases. Cette théorie est une donnée préalable à l'interprétation de nos analyses de phases du combustible irradié.

### La phase métallique

BRAMANN et al [29] ont analysé les inclusions brillantes et ont trouvé qu'elles sont composées d'éléments qui, selon l'analyse thermodynamique, doivent se trouver à l'état libre. Il décrit ainsi un alliage des éléments nobles qui ont, parmi les produits de fission métalliques, les rendements de fission les plus élevés : Mo, Ru, Tc, Rh et Pd. Ce résultat a été confirmé par la suite par différents auteurs [25, 27,28]. Comme on a pu le vérifier dans les combustibles simulés [34] ces inclusions sont entourées, suivant BRAMANN, d'une deuxième phase métallique qui contient principalement les éléments Pd, U et plutonium et de faibles concentrations de Ru et Rh. On note que le noyau de

l'inclusion ne contient ni uranium, ni plutonium.

Inclusions non métalliques

Les oxydes de barium et de strontium, BaO et SrO, sont considérés comme non solubles dans les oxydes mixtes $(UPu)O_2$ [20] cette hypothèse a été confirmée expérimentalement par N. OI [35] qui a irradié des monocristaux de $UO_2$ et a trouvé une ségrégation de strontium à la surface de l'oxyde. Etant donné la stabilité des zirconates de barium et de strontium, on a pu postuler la formation d'un composé du type $(Ba, Sr)ZrO_3$ [36] .

Dans les combustibles irradiés, ce composé n'a pas été identifié jusqu'ici. Cependant, des inclusions non métalliques à base de barium et de zirconium ont été trouvées ; leur abondance, par contre, était loin de celle prévue par les rendements de fissions de Ba, Sr et Zr.

La matrice

Dans les limites de concentrations atteintes par les terres rares et les oxydes de zirconium et d'yttrium dans les combustibles irradiés, leur solubilité complète est généralement admise [30,37]

L'analyse par microsonde X confirme qualitativement cette hypothèse [25,28,31], tous ces éléments étant toutefois dosés par défaut.

Une preuve quantitative, quoiqu'indirecte, de la dissolution a été donnée au cours des expériences de simulation [34,38]. Le paramètre cristallin mesuré de la matrice du combustible simulé est en accord avec le paramètre calculé à partir des volumes des oxydes de structure $CaF_2$ présents dans la matrice (U,Pu,PF solubles, O).

Il reste encore quelques éléments qui n'ont pas été mentionnés dans la répartition faite dont les propriétés chimiques servent à déterminer le classement :

In, Ag, Cd, Sn sont considérés comme constituants des inclusions métalliques.

Cs, Rb et I, en raison de leur volatilité, sont relâchés du combustible. Certains auteurs trouvent cependant du césium en faible concentration dans la zone chaude du combustible [39, 40, 41].

Br, Se et Te n'ont pas été localisés. Des réactions entraînant la formation de composés ioniques ne sont pas exclues.

Le tableau 13 montre l'importance relative (en %) des cinq groupes de produits de fission dans les différents combustibles du chapitre I.3.

# CHAPITRE III

## EFFETS DU GRADIENT THERMIQUE EN COURS D'IRRADIATION

La faible conductibilité thermique et la puissance spécifique élevée des combustibles à base d'oxydes mixtes font qu'un gradient thermique s'établit entre le centre du combustible et sa surface et qui peut atteindre, sur une partie du rayon, une valeur de l'ordre de 5000°/cm. Sous l'influence de ce gradient, le combustible subit des changements de structure et de composition le long du rayon.

La porosité, qui initialement était répartie de manière homogène, migre vers le centre. Le combustible est densifié et un trou central peut se former [42, 43].

Un gradient de stoechiométrie est créé, soit par diffusion d'oxygène en phase solide, soit par l'intermédiaire d'un équilibre gazeux [44]. On admet que l'équilibre dans la phase gazeuse s'établit par les pressions de $CO/CO_2$ ou $H_2/H_2O$ et fixe la stoechiométrie locale selon la pression partielle d'oxygène du mélange en fonction de la température [19,45]. Ainsi un combustible initialement sous-stoechiométrique s'appauvrit en oxygène dans la zone chaude.

La diffusion des cations dans le gradient thermique peut modifier la concentration locale, de l'uranium, du plutonium et des produits de fission en solution dans la matrice. Des résultats expérimentaux confirment la migration de plutonium dans la zone où T > 2000° [26,28] avec enrichissement au centre de l'aiguille. Par contre la répartition des produits de fission solubles a été généralement trouvée homogène le long du gradient de température [28, 41].

Les inclusions métalliques peuvent migrer sous l'influence du gradient et changer de composition en fonction de la température locale [27, 28, 46].

Nous admettons que la structure et la composition imposées par le gradient thermique sont conservées après l'arrêt de l'irradiation. Mais en effectuant une analyse après une longue période de refroidissement, il faut tenir compte de la filiation radioactive qui, dans certains cas, forme des produits de fission qui ne se trouvent pas à leur emplacement d'équilibre.

De plus, au cours de chauffages isothermes d'un échantillon irradié, un processus d'homogénéisation se produit dont le mécanisme peut avoir une cinétique différente pour chacun des composants.

# CHAPITRE IV

## SIMULATION D'UN COMBUSTIBLE IRRADIE : DESCRIPTION ET RESULTATS

Dans les chapitres précédents, nous avons déjà indiqué qu'une grande partie de nos connaissances sur le combustible irradié a été acquise par la "simulation".

Nous appelons simulation un échantillon qui a la composition chimique d'un combustible irradié à un taux de combustion donné [34]. Il est élaboré par frittage d'un mélange de poudres d'oxydes d'uranium et de plutonium avec les éléments de fission sous leur forme non radioactive. Les concentrations relatives correspondent à celles qui ont été calculées pour l'évolution du combustible sous irradiation (chapitre I.3).

### IV.1 Fabrication, aspect micrographique et comportement à haute température.

Nous avons fabriqué un combustible simulé de composition chimique identique à celle d'un combustible irradié dans un flux de neutrons rapides d'énergie moyenne égale à 630 KeV et à un taux de combustion de 6 % atomique TCF. La composition en produits de fission est celle qui correspond au combustible du type I du chapitre I.3 : 2,47 g d'un mélange de poudres d'éléments de fission sous forme métallique ou sous forme d'hydrure (tableau 14) ont été mélangés avec 50 g d'oxyde d'uranium et de plutonium en proportions pondérales de 16 % de $U_3O_8$, 65 % d'$UO_2$ et 19 % de $PuO_2$. Après pastillage, les échantillons ont été frittés en tubes scellés d'iridium pendant 100 h à 1750°C.

Les pastilles obtenues présentaient une forme extérieure cylindrique sans défaut apparent et nous avons mesuré une densité géométrique de $9,87 < \rho < 10.16$ g/cm$^3$.

Les préparations pour l'analyse micrographique ont été effectuées suivant les méthodes qui ont été développées pour les oxydes mixtes [47, 48].

L'aspect micrographique est montré sur la figure 6. La figure 6a est l'aspect brut de polissage : on reconnaît les inclusions métalliques sous forme de taches brillantes, les zones noires correspondent soit à la porosité soit à des arrachements dûs au polissage. La figure 6b représente l'aspect après attaque chimique: on voit qu'en général les inclusions se trouvent dans les joints de grains ; leur taille moyenne est de l'ordre de 2 µ. Parfois, les inclusions métalliques ont un caractère biphasé, comme le montre la figure 6c.

Après un traitement thermique pendant 6 h à 2000°C, on trouve l'aspect présenté dans la figure 6d : on constate un grossissement des grains ; une partie des inclusions se trouve maintenant à l'intérieur des grains et leur taille moyenne a diminué.

Au cours des traitements thermiques, nous avons eu l'occasion d'observer une réaction entre le combustible simulé et le creuset de tungstène. Un dépôt de tungstène s'est formé sur la surface de l'échantillon dès 2000°C après 6 h de traitement. Il est montré sur la figure 7a.

Après un traitement de 2 h à 2200°C, nous avons trouvé une pénétration importante de tungstène et l'échantillon présentait un aspect fondu. La figure 7b montre cette structure. A l'aide de la microanalyse, nous avons vérifié que la phase métallique la plus importante est bien constituée de tungstène. Nous avons constaté que ce phénomène est spécifique des échantillons de simulation, au moins pour des traitements qui ne dépassent pas 4h à 2200°C.

Pour cela, nous avons chargé le creuset de tungstène avec deux pastilles superposées : un témoin de $(U_{0,8}Pu_{0,2})O_2$ au-dessus d'une pastille de simulation. Après 4 h de chauffage à 2200°C, nous avons trouvé l'échantillon témoin au fond du creuset, le simulé s'était effondré et se trouvait réparti de manière compacte autour de la pastille témoin. Le tungstène a été retrouvé dans la zone de matière "fondue" formant une couronne autour de l'échantillon témoin (voir figures 7c et 7d).

En conséquence, nous avons décidé de ne pas dépasser la limite de 2200°C dans nos expériences de vaporisation de combustible irradié, pour tenir compte de la mauvaise compatibilité entre le tungstène et les oxydes mixtes contenant des produits de fission.

## IV.2 Analyse des phases par microsonde

Les échantillons simulés ont été analysés soigneusement à l'aide de la microsonde de CASTAING. La synthèse de ces analyses nous a déjà servi dans le chapitre II.1.

Les résultats essentiels sont les suivants :

Les inclusions métalliques : comme composants prépondérants de la phase brillante, nous trouvons les éléments Ru, Mo et Re ainsi que Rh et Pd. Si les concentrations en Ru, Mo, Rh et Pd étaient relativement constantes dans un grand nombre d'inclusions, ceci n'est pas le cas pour l'élément rhenium. La concentration de cet élément dans les inclusions est soit faible, de l'ordre de 1 % en poids, soit très forte, pouvant même atteindre 100 %. Ce fait montre que le rhenium ne se comporte pas comme le produit de fission technetium qu'il remplaçait dans notre simulation : le Tc a constamment été trouvé, au cours des analyses de combustibles irradiés, dans les inclusions, à des concentrations qui correspondent à son rendement de fission [27, 29, 31].

En vue des analyses à faire plus tard sur une simulation de 16 % atomique TCF [49], nous avons repris un échantillon de cette simulation et nous avons pu également détecter la deuxième phase métallique du type $UPd_3$. Comme les inclusions dans la simulation présente (6 % atomique TCF) sont plus petites, le dosage précis de cette phase n'a pas pu être effectué.

La matrice : A part les éléments uranium et plutonium nous détectons dans la matrice les éléments qui sont considérés comme solubles. Toutefois, tous ces éléments ont été dosés largement par défaut. Il faut noter que leur recherche a été simplifiée par le remplacement, dans la simulation, de l'ensemble des métaux de terres rares supérieurs par un seul d'entre eux, le praséodyme (voir tableau 14).

Une phase grise a été détectée, à fort grossissement, en très faible quantité. Son aspect était identique à celui de la phase grise qui a été noté dans la simulation de 16 % atomique TCF. Il s'agit alors d'un composé de Zr et Ba, probablement $BaZrO_3$.

## IV.3 Evolution du rapport oxygène/métal d'après les mesures de rayons X.

Les expériences de simulation nous ont également permis de suivre l'évolution du rapport oxygène/métal de la matrice.

Dans le calcul de la simulation, on se fixe le taux de combustion simulé $\tau$ et la stoechiométrie finale $S_F$ du combustible. Comme on l'a vu (chapitre II.2), ces paramètres sont liés à la stoechiométrie initiale $S_i$ par la relation :

$$S_F - S_i = \frac{\tau(S_i - \overline{V})}{100 - \tau}$$

où $\overline{V}$ est la valence moyenne des produits de fission.

Dans la pratique, lors de l'élaboration de la simulation, il faut introduire dans le mélange la quantité d'oxygène suffisante pour oxyder les produits de fission et atteindre la stoe-

chiométrie $S_F$ visée. Si on remarque que chaque fission libère $S_i$ atomes d'oxygène, il suffira d'introduire dans la fabrication $S_i/2$ molécules de $U_3O_8$ par fission, chaque molécule d'$U_3O_8$ libérant elle-même deux atomes d'oxygène suivant la réaction :

$$U_3O_8 \rightarrow {}^3UO_2 + O_2$$

Le paramètre cristallin de l'oxyde de simulation a été mesuré et comparé à celui d'un échantillon témoin, après qu'ils aient subi simultanément différents traitements thermiques :

- traitement standard sous hydrogène humide, conduisant au rapport stoechiométrique O/U+Pu = 2,00

- traitement sous hydrogène purifié, conduisant au rapport O/U+Pu = 1,924 mesuré par gravimétrie sur l'échantillon témoin, cette méthode ne pouvant être appliquée aux oxydes de simulation

Le tableau 15 présente les résultats des mesures de paramètre de trois échantillons de simulation, soit bruts de fabrication, soit après traitement standard d'oxydo-réduction. Les valeurs mesurées sont en très bon accord avec les paramètres calculés d'après les principes et les données de la réf. [50], en supposant l'uranium et le plutonium tétravalents :

$$a \text{ simulé} = 5{,}4511 \text{ Å}$$
$$a \text{ témoin} = 5{,}4552 \text{ Å}$$

On remarquera en particulier que la différence entre les paramètres de l'échantillon de simulation et du témoin, qui est d'environ $4.10^{-3}$ Å, donc facilement détectable puisque l'erreur expérimentale n'excède pas $5.10^{-4}$ Å, reste constante après les différents traitements thermiques subis et égale à la valeur théorique.

Les résultats expérimentaux sont montrés sur la figure 8 qui nous a également permis de déterminer le rapport O/U+Pu de

l'échantillon de simulation, brut de fabrication ; on trouve $1,980 < O/U+Pu < 1,983$, en bon accord avec la valeur visée dans les calculs de simulation (1,98). Nous considérons ces résultats comme la preuve que les produits de fission que nous avons considérés comme solubles sont effectivement mis en solution dans la matrice, complètement et dans les proportions correctes. Nous concluons par ailleurs que la formation du composé (Ba Sr Zr)$O_3$ reste très limitée, en accord avec les résultats de l'analyse micrographique.

# DEUXIEME PARTIE

# ETUDE DE LA PHASE VAPEUR D'UN COMBUSTIBLE IRRADIE

# CHAPITRE I

## MESURES DE TENSION DE VAPEUR

Les tensions de vapeur de combustibles nucléaires, en particulier des oxydes et des oxydes mixtes d'uranium et de plutonium, ont fait l'objet de nombreuses études (voir chapitres II.4 et III.4 des réf. [16] et [51,52,53]). Les résultats de ces travaux ont contribué considérablement à la connaissance du système U-Pu-O.

Ce travail représente la continuation logique des travaux de PASCARD, en appliquant la méthode de mesure des tensions de vapeur au système complexe U-Pu-PF-O.

### I.1 Base thermodynamique

La transformation d'une substance de l'état condensé en vapeur peut être considérée comme une réaction chimique. Les lois qui régissent un équilibre chimique sont ainsi applicables au système phase condensée-phase vapeur. Les études de vaporisation peuvent alors servir à déterminer des propriétés thermodynamiques de la phase vapeur ainsi que de la phase solide [54,55].Ainsi, un processus de vaporisation univariant :

substance condensée → même substance gazeuse

est déterminé par la variation d'énergie libre liée à la réaction, soit :

$$\Delta F^{\circ} = - RT \ln K \qquad (K = \text{constante d'équilibre})$$

Si ces vapeurs se comportent comme un gaz idéal, la constante d'équilibre K peut être remplacée par la pression d'équilibre P de la vapeur :

$$\Delta F^{\circ} = - RT \ln P$$

En appliquant la relation : $\frac{d(\Delta F^{\circ})}{d T} = \Delta S^{\circ}$, on trouve :

$$\frac{d(\frac{\Delta F^{\circ}}{T})}{d T} = - \frac{R d \ln P}{d T} = \frac{\Delta H^{\circ}}{T^2}$$

(où $\Delta H^{\circ}$ est la chaleur latente du processus de vaporisation)

Notons que cette formule est identique à l'équation dérivée de la relation de CLAUSIUS-CLAEYRON quand on admet que le volume du solide est négligeable par rapport à celui de vapeur :

$$+ \frac{\Delta \ln P}{\Delta T} = \frac{\Delta H^{\circ}}{RT^2}$$

En négligeant l'influence des chaleurs spécifiques sur la chaleur latente d'évaporation, on peut écrire :

$$+ \ln P = - \frac{\Delta H^{\circ}}{RT} + \text{const.}$$

Cette équation nous décrit ainsi une droite dans le diagramme $\ln P = f(1/T^{\circ}K)$, tant qu'un changement dans la phase gazeuse ou dans la phase solide n'intervient pas.

Le sujet a été traité largement dans la littérature [56, 57, 58] et les données existantes [21, 59, 60, 61] nous permettent d'obtenir la chaleur latente de vaporisation soit à l'aide de la deuxième loi, soit à l'aide du troisième principe.

Les pressions partielles en équilibre avec une solution idéale sont obtenues en appliquant la loi de RAOULT :

$$P_i \text{ (mesuré)} = x_i P_i^\circ$$

où $x_i$ est la fraction molaire de la substance i dans la phase condensée et $P_i^\circ$ sa tension de vapeur à l'état pur. Ce qui nous amène à la relation :

$$\ln P_i \text{ (mesuré)} = - \frac{\Delta H_i^\circ}{RT} + \text{const.} + \ln x_i$$

qui donne le rapport entre les pressions du produit étudié, à l'état pur et en solution, à une température donnée.

Des déviations à ce comportement idéal sont fréquentes et sont décrites par les coefficients d'activité $\gamma$ :

$$\gamma = \frac{P_i \text{ (mesuré)}}{P_i \text{ (idéal)}}$$

c'est-à-dire, le coefficient d'activité est le rapport de la pression observée à la pression que l'on aurait obtenue si la solution avait été idéale.

A faible concentration du soluté, on peut admettre la validité de la loi de RAOULT pour le solvant.

## I.2 Méthode d'effusion de KNUDSEN

Deux méthodes sont utilisées pour déterminer les tensions de vapeur des matériaux réfractaires : la méthode de LANGMUIR [62] et celle de KNUDSEN [63]. Dans ces deux cas particuliers, on peut utiliser aussi la méthode de transfert de vapeurs par un courant de gaz.

Dans la méthode de LANGMUIR, on détermine la vitesse d'évaporation d'un échantillon de surface connue à une température déterminée, soit par perte de poids, soit par la quantité de matière condensée. Deux limitations caractérisent cette méthode :

d'une part la vraie surface est mal connue et sa nature n'est pas nécessairement représentative de l'échantillon ; d'autre part la température de l'échantillon est hétérogène.

Dans la méthode de KNUDSEN, on mesure la vitesse d'échappement des vapeurs dans le vide, à travers un petit orifice d'une enceinte saturée de vapeur, qui doit se trouver en équilibre avec la phase condensée.

La présente recherche a été faite en adoptant la méthode de KNUDSEN. Des trois voies principales qui sont utilisées dans la détermination des pressions d'équilibre d'une enceinte d'effusion /64/, nous avons choisi de recueillir une partie de la vapeur condensée sur une surface déterminée, à une distance connue de l'orifice. Dans une telle mesure, la tension de vapeur d'une espèce i est calculée par la formule :

$$P_i = \frac{G_i}{a}\sqrt{\frac{2\pi RT}{M_i}} \cdot \frac{d^2+r^2}{r^2}$$

où $P_i$ = pression en dynes/cm$^2$
$G_i$ = poids, en grammes, du dépôt formé pendant une seconde
$a$ = surface de l'orifice en mm$^2$
$M_i$ = poids moléculaire du composé i dans la phase gazeuse, en g.
$r$ = rayon du dépôt
$d$ = distance entre l'orifice et le centre du dépôt
$T$ = température absolue
$R$ = constante des gaz en erg/deg.mole

Quand la pression est exprimée en atmosphères, la formule devient :

$$P_{i_{atm}} = 0{,}02256 \cdot \frac{Gi}{a}\sqrt{\frac{T}{M_i}} \cdot \frac{r^2+d^2}{r^2}$$

Dans l'application de la méthode d'effusion, il faut tenir compte de certaines conditions limitatives, qui doivent être respectées pour que la pression mesurée soit représentative de la pression d'équilibre ; en fin de compte, elles déterminent la nature et la géométrie de l'enceinte et le vide que le système de mesure doit atteindre /56/.

L'enceinte qui a été utilisée au long de ce travail est montrée dans la figure 9. Elle est en tungstène, matériau compatible avec les oxydes mixtes sous-stoechiométriques d'uranium et de plutonium jusqu'aux températures au-dessus de 2300°C [51] et inerte vis-à-vis du composé (U-Pu-PF-O), au moins jusqu'à 2100°C. Le volume de l'enceinte permet d'utiliser des échantillons qui offrent, même quand ils sont massifs, une surface d'évaporation suffisamment grande pour que la pression d'équilibre ne soit pas modifiée par l'échappement partiel de vapeur par l'orifice de la cellule.

En principe, le vide du système de mesure doit être inférieur à la pression d'équilibre, mais cette condition ne paraît pas critique dans les mesures de tensions de vapeur de réfractaires [56].

## I.3 Application à l'étude du combustible irradié

La connaissance des données thermodynamiques relatives aux constituants d'un combustible irradié à l'état pur nous permet d'appliquer la méthode de mesure des tensions de vapeur à l'étude des propriétés générales du combustible et au comportement de chaque produit de fission, en particulier de ceux qui sont difficilement accessibles à d'autres méthodes.

Le dépôt de vapeurs met l'échantillon à étudier sous une forme favorable à l'analyse radiochimique, permettant de détecter les éléments en question à l'aide de leur rayonnement caractéristique. La sensibilité de la méthode d'analyse offre la possibilité de détecter avec précision des quantités extrêmement faibles de matière. Ceci a pour conséquences que, d'une part les échantillons obtenus par évaporation peuvent être manipulés sans protection biologique particulière et que, d'autre part la quantité de combustible irradié à étudier peut être de l'ordre de 50 mg, correspondant à environ 5 $mm^3$ de matière.

La phase vapeur d'un combustible irradié représente un équilibre inconnu résultant d'un grand nombre de réactions entre la phase gazeuse et la phase solide. La notion de tension de

vapeur d'une espèce au-dessus d'un combustible correspond ainsi à la pression partielle d'un élément ou à celle de son composé, en admettant que l'espèce mesurée existe dans la phase gazeuse sous une seule forme chimique.

En appliquant la méthode de mesure des tensions de vapeur à un combustible irradié, on poursuit les buts suivants :

a) détermination de l'influence des produits de fission sur les tensions de vapeur du combustible.

b) identification des produits de fission et de capture dans la phase vapeur et mesure de leur tension de vapeur.

c) détermination de l'état chimique des produits de fission dans le solide par leur mode de vaporisation.

d) détermination, dans les cas favorables, de la concentration des produits de fission et de capture.

e) détermination des variations locales de concentration des composants du combustible irradié.

a) Les mesures des tensions de vapeur de combustibles nucléaires sont effectuées en vue de l'utilisation de ces matériaux dans les conditions extrêmes de réacteurs de puissance.

Les résultats de ces mesures sont généralement appliqués pour prédire le comportement du combustible en cours d'irradiation sans tenir compte d'une influence possible des produits de fission [19, 88].

L'influence du rapport oxygène/métal sur les tensions de vapeur des oxydes et des oxydes mixtes d'uranium et de plutonium est bien connue [16]. Pour les oxydes mixtes RAND et al [19] ont mis en évidence les relations entre les tensions de vapeur et les propriétés thermodynamiques du solide. Dans le domaine sous-stoechiométrique et pour une concentration en $PuO_2$ inférieure à 30 %, ces propriétés sont seulement fonction de la valence du plutonium, ce qui est considéré comme une propriété très avantageuse.

Or, il est connu cependant que dans le système $UO_2$-$CeO_{2-x}$ [65] la variation de $\Delta\bar{F}(O_2)$ n'est pas uniquement fonction de la valence du cerium. Il est alors nullement évident que dans un combustible fortement irradié, qui contient des ions d'éléments des terres rares en majorité trivalents, le $\Delta\bar{F}(O_2)$ soit toujours contrôlé par la valence du plutonium, calculée à partir des rapports Pu/(U+Pu) et O/(U+Pu). Des résultats récents montrent en effet que certaines propriétés physiques du système (U-Pu-PF-O) sont contrôlées plutôt par le rapport O/M que par le rapport O/(U+Pu) : le rapport O/M est défini comme :

$$O/M = \frac{\text{O lié à (U+Pu) + O lié aux PF solubles}}{\text{U+Pu+PF solubles}}$$

c'est-à-dire qu'il représente le rapport oxygène/métal de la matrice de type $CaF_2$ où les atomes d'uranium et de plutonium ont été partiellement remplacés par les PF solubles. Par rapport à une mole du combustible initial $(U,Pu)O_{S_i}$, la matrice au cours d'irradiation est une solution de $(1-\tau)$ mole de $(U,Pu)O_{S_{F(\tau)}}$ et de $2\,Z\,\tau$ mole d'oxydes de PF solubles : $\tau$ est le taux de combustion fractionnaire, z est la fraction de PF solubles rapportée à l'ensemble de tous les produits de fission et $S_{F(\tau)}$ est la stoechiométrie, fonction de $\tau$. Comme la valence moyenne des produits de fission solubles $\bar{n}$ est inférieure à la valence moyenne de (U+Pu), il est toujours vrai que dans une matrice d'un combustible irradié O/M < O/U+Pu, dans la mesure où le système étudié peut être considéré comme un système clos, où la quantité disponible d'oxygène est déterminée par la stoechiométrie initiale du combustible.

La variation du rapport O/M en cours d'irradiation est décrite par l'équation :

$$O/M = \frac{S_i - \tau(\bar{v}-z\bar{n})}{1-\tau(1-2z)}$$

où $\bar{v}$ est la valence moyenne de produits de fission définie dans le chapitre II.2 et $\tau$ est donné en TCF fractionnaire. Les variations de O/U+Pu et de O/M dans certains cas particuliers sont montrées sur la figure 10. Il faut noter que sur cette figure, il était admis

que le rapport O/U+Pu = 2,00 est la limite supérieure de l'oxydation de la matrice.

Ces réflexions seront à la base de l'interprétation de la variation de la tension de vapeur du plutonium du combustible irradié par rapport au combustible initial. Nous tiendrons alors compte des variations probables de la pression partielle d'oxygène au-dessus d'un combustible irradié, provoquées par la dissolution de produits de fission dans la matrice.

b) L'analyse radiochimique de dépôts de vapeurs nous permet tout d'abord l'identification des éléments présents dans la phase vapeur à une température donnée. Cette identification est limitée, étant donné la méthode d'analyse, aux produits qui sont radioactifs au moment de la mesure.

Leur nombre diminue au cours de la période de refroidissement, phénomène qui a été calculé quantitativement /_66_/.

Par comptage absolu de l'intensité du rayonnement relatif à un nuclide déterminé, on peut calculer la pression partielle de l'élément correspondant. Pour cela, il faut connaître un certain nombre de paramètres, notamment la fraction atomique $f_x$ du nuclide dans le mélange isotopique de l'élément et la constante de désintégration $\lambda_i$ fixant l'activité spécifique $A_c$ du nuclide étudié. On passe des résultats de comptage au poids par la relation suivante :

$$G_i = \frac{A}{Ac\ f_x} \quad f_{R_1}\ f_{R_2}\ \frac{1}{t_1\ t_2}$$

où $G_i$ = poids déposé sur la cible, en une seconde de vaporisation, exprimé en grammes.

$A$ = nombre de coups qui ont été comptés

$A_c f_x$ = activité spécifique en dés./g.sec. de l'élément analysé

$f_{R_1}$ = correction de rendement de comptage /_67_/.

$f_{R_2}$ = rendement relatif du rayonnement mesuré /68/.

$t_1$ = temps d'exposition de la cible au faisceau moléculaire en secondes

$t_2$ = temps de comptage, en secondes.

On obtient ainsi, pour une température donnée, la composition de la vapeur à partir des pressions partielles des éléments mesurés.

c) En suivant la variation en fonction de la température de la pression partielle du système à l'équilibre, on obtient des droites en P = f (1/T°K) dont la pente fournit les chaleurs latentes de vaporisation. Connaissant les valeurs relatives aux éléments et à leurs composés, on peut déterminer à quel corps correspond la valeur mesurée.

d) Connaissant l'état chimique du produit de fission considéré, nous obtenons dans les cas favorables, par application de la loi de RAOULT, sa concentration dans une des phases du combustible irradié. Cette détermination peut être effectuée avec précision seulement pour les produits de fission et de capture qui sont en solution dans la matrice, en raison de leur faible concentration. Dans le cas de valeurs de pressions de vapeur correspondant aux produits de fission qui se trouvent en dehors de la matrice, la précision de la méthode ne permet pas de distinguer entre l'effet de la concentration et l'influence du facteur d'activité chimique.

e) Par comparaison entre les résultats obtenus, en gardant toutes les autres conditions constantes, pour des échantillons provenant de différents emplacements dans le combustible irradié, on peut suivre une éventuelle variation locale de la composition des combustibles. En utilisant la technique des microprélèvements on peut, par exemple, comparer la composition au centre d'un élément de combustible à celle d'une région proche de la surface, mettant ainsi en évidence des processus de migration en cours d'irradiation.

# CHAPITRE II

## APPAREILLAGE ET PROCEDURE EXPERIMENTALE

Le projet de mesure de tensions de vapeur de combustibles irradiés nécessite que l'appareil de vaporisation soit installé dans une enceinte qui protège l'opérateur contre le rayonnement intense de l'échantillon.

L'ensemble expérimental comprend ainsi trois parties principales :

- l'appareil d'effusion
- la protection biologique
- l'installation d'analyse par spectrométrie nucléaire

L'appareil d'effusion télémanipulable et sa protection biologique ont été étudiés et construits au cours de ce travail.

### II.1 Appareil d'effusion

L'appareil construit est une adaptation à l'étude des combustibles irradiés d'un appareil existant dans le laboratoire et qui a été décrit ailleurs [69]. Nous en avons gardé les principes généraux, notamment ceux de l'alimentation stabilisée de haute tension.

Le four de bombardement électronique est montré sur la figure 11. Sa construction actuelle est sans vis de serrage, ce qui simplifie son montage. La cellule est placée soit sur

un support, soit sur des tiges "couteaux". Dans la première version, il est possible de placer la cellule à l'aide de télémanipulateur.

L'ensemble de l'appareil de vaporisation est montré sur la figure 12. Les opérations principales : éjection de cibles, mouvement du volet d'obturation, verrouillage de la bride inférieure, ainsi que les mouvements de déplacement de l'appareil, pour manipulation sur le four et pour rechargement des cibles, sont automatisées par servo-mécanismes électriques et pneumatiques.

Un groupe de vide composé d'une pompe primaire à deux étages (Edwards type ED 330) et d'une pompe à diffusion d'huile à quatre étages (Edwards type E 06), permet d'atteindre dans l'appareil un vide meilleur que $10^{-6}$ torr au niveau de la bride supérieure. Le système de vide est relié à l'appareil de vaporisation par une vanne papillon à commande pneumatique (Edwards QSB 6P) et un baffle à chevrons (Edwards CB 6A) refroidi par un groupe frigorifique à fréon.

Les paramètres qui interviennent dans la formule de calcul de la tension de vapeur à savoir, la distance d entre l'orifice d'effusion et la cible sur laquelle la vapeur est déposée, et le rayon r, du dépôt ont été déterminés : la distance d est mesurée à l'aide d'un cathétomètre, le rayon r a été déterminé par densitométrie d'une autoradiographie d'un dépôt, invisible à l'oeil nu, de $ZrO_2$ irradié, c'est-à-dire marqué par Zr/Nb-95. L'autoradiographie et le diagramme de la mesure densitométrique sont montrés sur la figure 13. La symétrie de la courbe d'absorption montre que le centre du dépôt se trouve bien dans l'axe de l'orifice.

La température de l'enceinte d'effusion est mesurée à l'aide d'un micropyromètre à disparition de filament (type Pyro E.U.A.) avec lequel on vise le trou au fond de l'enceinte. Celui-ci a le caractère d'un corps noir. Le rayonnement de température traverse une fenêtre en quartz de qualité optique et un prisme à 90° (voir figure 12). La correction due à l'absorption sur le

chemin optique a été déterminée à l'aide d'une lampe étalon à ruban de tungstène (Philips), utilisant une alimentation stabilisée à courant continu.

L'étalonnage de la lampe de référence a été effectuée par le Laboratoire d'Essai National à Paris, sur la base des données de DEVOS [70].

II.2 Protection biologique et télémanipulation

La figure 14 montre l'ensemble de l'installation "VAMPIR" (Vaporisation de Matériaux Post Irradiation) où la double protection est visible. La protection intérieure qui garantit l'étanchéité alpha est une boîte en acier inoxydable dont la face avant et la face arrière comportent des panneaux transparents. Le système de vide est installé au-dessous du niveau de travail et en dehors de la protection alpha. Cette enceinte intérieure, qui est construite suivant les normes habituelles des boîtes à gants pour manipulation du plutonium, est entourée par une protection de 150 mm de plomb. Un sas de type Lacalhène, protégé par une porte en plomb, permet d'effectuer les entrées et sorties de matières qui sont nécessaires au fonctionnement de l'installation.

Une première porte, à l'arrière de la protection gamma, donne accès au groupe de vide. Une deuxième porte permet l'intervention manuelle, exécutée à l'aide des gants installés sur le panneau arrière.

Le toit est constitué de poutres en plomb démontables et donne accès à un trou d'homme, prévu pour une intervention en cas de panne grave.

Un hublot carré sur la face avant et un hublot rond installé dans la porte arrière, permettent de suivre les opérations. A la hauteur du prisme et dans l'axe optique du rayonnement de température, il y a un bouchon amovible qui permet de viser l'enceinte d'effusion à l'aide du pyromètre optique.

Les commandes à distance sont centralisées dans une armoire de commande électrique qui contrôle les opérations principales de l'installation "VAMPIR". Les autres opérations sont effectuées à l'aide de deux télémanipulateurs (type Barras), ou, en cas exceptionnel, manuellement par les gants.

L'implantation de l'ensemble de l'installation "VAMPIR" dans le laboratoire est montrée sur la figure 15.

La protection gamma a été construite d'après des calculs de l'activité probable des échantillons à étudier. Les tableaux 16 et 17 donnent les calculs qui ont été effectués en admettant une protection de 100 mm de plomb et un flux extérieur de rayonnement de 2,5 mr/h. Ils couvrent les deux types probables de combustibles $(UPu)O_{2-x}$ (enrichis ou non en $^{235}U$) à différents taux de combustion et différents temps de refroidissement. Dans ces données, le point A représente la distance entre l'échantillon et la face avant de la protection, et le point B est la distance jusqu'à la face arrière de l'installation.

La protection existant actuellement, qui est de 150 mm de plomb, permet donc de travailler largement dans les normes de sécurité fixées par le calcul précédent.

## II.3 Installation d'analyse par spectrométrie

Le schéma synoptique du spectromètre est présenté sur la figure 15. Un analyseur d'amplitude (Intertechnique type SA 40B) à 400 canaux forme le noyau de l'installation, les organes d'entrée et les alimentations variant en fonction du type de détecteur.

Les spectres de rayonnement gamma sont mesurés soit avec un détecteur à scintillation NaI (Tl) soit avec un détecteur Ge/Li. Les deux détecteurs se distinguent dans leur rendement de comptage et leur résolution énergétique. La résolution en énergie du détecteur Ge/Li est améliorée par plus d'un facteur 10 par rapport à celle du détecteur NaI, ce qui le rend particulièrement utile

pour l'analyse des spectres complexes d'un combustible irradié. Pour les sources qui ont un spectre simple avec des raies facilement séparables, le détecteur NaI présente l'avantage d'un rendement de comptage qui lui est supérieur d'un facteur pouvant atteindre 50. Les courbes 17 à 20 montrent les rendements de comptage et des spectres typiques correspondant aux deux détecteurs. Les analyses des sources de combustibles irradiés ont été faites presque exclusivement avec le détecteur Ge/Li.

Les spectres de rayonnement alpha sont mesurés avec un détecteur à jonction de type barrière de surface. Etant donné la forte absorption du rayonnement alpha dans l'air, les mesures ont été faites dans une chambre à vide. Un spectre typique d'une de nos sources est présenté sur la figure 21.

Comme organe de sortie, le spectromètre est équipé d'une machine imprimante IBM pilotée par un châssis de commande (INT. RG-21), ainsi que d'une sortie sur bande magnétique (INT. RG-23) qui sert également de calculateur intermédiaire. Enfin, l'écran de l'analyseur SA 40B peut être photographié avec un appareil Polaroïd.

Si les spectres $\gamma$ sont directement exploités de manière quantative, ce n'est pas le cas pour les spectres alpha. On dispose d'une échelle de comptage qui permet le comptage absolu, mais global du rayonnement alpha et bêta.

Le comptage bêta est effectué à l'aide de la même échelle de comptage en utilisant un scintillateur organique SPF 50x3.

Le schéma de l'échelle de comptage est présenté sur la figure 22. La figure 23 montre l'implantation de l'ensemble de spectrométrie et de comptage dans le laboratoire.

Dans toutes les mesures, nous avons utilisé comme sources étalons des échantillons sélectionnés parmi nos cibles. Ces échantillons ont été envoyés pour étalonnage absolu au Laboratoire de Métrologie de la Radioactivité du CEN-Saclay.

## II.4 Procédure expérimentale

Après le choix de l'échantillon, l'aiguille correspondante est découpée en cellule chaude et séparée de la gaine. Ensuite, l'échantillon est transféré dans l'installation "VAMPIR" où il est broyé et introduit dans l'enceinte d'effusion. Celle-ci a été usinée auparavant à la pâte de diamant, pour assurer une bonne étanchéité au contact de ses deux parties ; le diamètre de l'orifice est mesuré sur un microscope. L'enceinte est placée dans le four et les écrans sont mis en place.

Après fermeture de la cloche à vide, l'installation est mise sous vide progressivement pour éviter qu'un grain de la poudre ne bouche l'orifice pendant le dégazage. Après avoir atteint un vide de l'ordre de $10^{-6}$ torr, le four est lentement monté en puissance. L'exposition de la cible au faisceau moléculaire débute quand la température est stabilisée.

La cible est éjectée dans le sas de récupération, d'où elle est retirée tout en maintenant le vide secondaire et la température dans la chambre d'effusion. Elle est récupérée sur une surface non contaminée, puis immédiatement mise dans une boîte étanche. Cette boîte est sortie de l'installation VAMPIR et au cours d'un passage dans deux boîtes à gants, dont le niveau de contamination est décroissant, avec changements des boîtes à chaque niveau, on obtient à la fin que la source se trouve stockée dans une boîte qui peut être manipulée sans protection biologique.

La source subit successivement les analyses alpha, beta et gamma. Les comptages gamma sont faits en gardant la source dans sa boîte. Les analyses alpha et beta cependant sont effectuées de façon que rien ne se trouve entre la surface du dépôt et le détecteur.

Après identification des raies, une énergie représentative est choisie pour chaque isotope, dont la surface est la base du calcul du poids de cet élément dans le dépôt.

# CHAPITRE III

## RESULTATS EXPERIMENTAUX DE TENSIONS DE VAPEUR

### III.1 Description de l'échantillon

L'échantillon qui a fait l'objet de cette étude est consitué par une coupe radiale dans la zone chaude d'une aiguille d'un combustible irradié pendant 273 jours dans un flux de neutrons rapides. L'énergie moyenne des neutrons était de 630 KeV. La puissance spécifique moyenne était équivalente à $1,27.10^{12}$ fission/sec.g.(U+Pu). Il est sous forme d'un mélange de poudre et des petits granules : la poudre provient de la périphérie des granules de la zone chaude de l'aiguille.

La composition initiale du combustible est donnée dans le tableau 18 ; le rapport initial O/(U+Pu) était de 1,986.

L'échantillon avait refroidi pendant 630 jours avant le début de cette expérience.

La composition de l'échantillon à la fin de l'irradiation et au cours de la période de refroidissement est donnée dans les tableaux 19 et 20. L'évolution des atomes lourds a été calculée suivant le schéma de la figure 1, sur la base des sections efficaces de fission et de capture du tableau 1. Les résultats sont présentés dans le tableau 21 et sur la figure 24. Les données $^{241}Am^{x}$ et $^{241}Cm^{x}$ représentent l'évolution de ces nuclides en admettant que la concentration initiale de $^{241}Am$ est nulle [71]

III.2 Protocole expérimental

L'existence de corps très volatils dans l'échantillon brut nous a amenés à effectuer les mesures de vaporisation selon deux cycles thermiques différents.

Dans le premier cycle, les expositions successives ont été faites de manière que l'échantillon reste pendant un temps aussi bref que possible aux températures d'exposition : on minimise l'intégrale $\int T dt$ dans les limites de ce cycle (1050°K-2320°K), tout en respectant la stabilité de la température à chaque point de mesure.

Dans le deuxième cycle, qui couvre le même domaine de températures, la durée de chaque palier n'est pas limitée et on s'efforce d'effectuer les expositions dans des conditions d'équilibre, ce qui a été vérifié à la température de 2000°K par une longue isotherme [log $P_T$ = f(t)].

Sachant que l'échantillon représente une coupe radiale, nous obtenons, par comparaison des résultats des deux cycles thermiques, une indication sur l'évolution de l'hétérogénéité de l'échantillon au cours du processus de vaporisation.

III.3 Résultats de tensions de vapeur des différents éléments

Par les différentes méthodes d'analyse radiochimique dont nous disposons, nous avons déterminé les pressions partielles en fonction de la température des éléments suivants :

- par comptage et spectrométrie alpha : Pu, Am et Cm
- par spectrométrie gamma : Cs, Sb, Ce, Ru et Nb
- par comptage beta : strontium

Nous avons disposé d'un programme de calcul [72] qui, à partir des données de comptage d'une expérience déterminée, nous fournit le poids de matière déposée sur la cible et la pression de vapeur. Ce programme calcule également, par la méthode des moindres carrés, la variation de la pression en fonction de la

température, exprimant le résultat sous la forme :

$$\log P_{(atm)} = A + \frac{B}{T}$$

Il est regrettable que notre méthode d'analyse ne nous ait pas permis de doser les quantités d'uranium dans les dépôts. Actuellement, aucune méthode ne convient pour un dosage précis ; il semble cependant ne pas être exclu qu'une exploitation du rayonnement des dépôts dans le domaine d'énergie des rayons X (< 100 KeV) à l'aide d'un détecteur Ge/Li spécialement adapté, permette la détermination quantitative de l'uranium.

### III.3.1 Tension de vapeur des éléments dosés par leur rayonnement alpha

Tension de vapeur du plutonium.- Le plutonium est dosé à l'aide d'une raie du spectre alpha, dont le maximum d'intensité est situé à environ 5,15 MeV. Dans cette raie, se superposent les émissions alpha des isotopes $^{239}Pu$ et $^{240}Pu$. Etant donné la différence importante entre les constantes de désintégration de $^{239}Pu$ et $^{240}Pu$, il faut connaître le rapport $^{239}Pu/^{240}Pu$ dans le combustible et son évolution au cours de l'irradiation. Ce rapport varie de 0,1087 au début à 0,12 à la fin de l'irradiation (tableau 22). Sur la base de ce rapport, qui permet de calculer l'activité spécifique du plutonium, et des données expérimentales contenues dans le tableau 23, les tensions de vapeur du plutonium ont été calculées en admettant une vaporisation de $PuO_2$. Les résultats du calcul sont donnés dans le tableau 24.

Pour les deux cycles, nous obtenons les équations :

$$\text{1er cycle : } \log P_{(atm)} = -\frac{0{,}24888.10^5}{T} + 6.47$$

$$\text{2ème cycle: } \log P_{(atm)} = -\frac{0{,}25743.10^5}{T} + 6.56$$

Les résultats sont reportés sur la figure 25 où la courbe (b) représente le premier cycle et la courbe (a) le deuxième. Cette figure contient également les tensions de vapeur du plutonium, mesurées par PASCARD au-dessus des composés $(U_{1-y}Pu_y)O_{2-x}$

où x = 0,20 et 0,25 et celles correspondantes à $PuO_{1,66}$ (voir dans les Réf. [16,51]. A l'aide de ces derniers résultats, on peut interpréter les valeurs expérimentales obtenues.

En comparant les pentes d log P/d(1/T) de nos courbes à celles citées ci-dessus, on trouve un bon accord avec les valeurs relatives à l'oxyde mixte à 25 % de $PuO_2$. Toutefois, en ce qui concerne leurs valeurs absolues, nous mesurons, pour les deux cycles thermiques, des pressions partielles de plutonium qui sont plus élevées.

Or l'analyse du processus de vaporisation de l'oxyde mixte sous-stoechiométrique montre que la pression partielle de plutonium est directement liée à la pression partielle d'oxygène au-dessus du système [19,74]. En effet, le mécanisme de la vaporisation est déterminé par les équilibres suivants : la vaporisation :

$$PuO_{2-y} \text{ (solide)} + 1/2\ O_2 \rightarrow PuO_2 \text{ (gaz)}$$

qui est caractérisé par un changement d'énergie libre de :

$$\Delta F^\circ = \Delta F_f\ PuO_2\ (g) - \Delta F_f\ PuO_{2-y}\ (s)$$

la dissociation :

$$PuO_2\ (g) \rightarrow PuO(g) + 1/2\ O_2$$

qui est accompagnée par un changement d'énergie libre de

$$\Delta F^\circ = \Delta F_f\ PuO\ (g) - \Delta F_f\ PuO_2\ (g)$$

et dont la constante d'équilibre est :

$$K = \frac{[PuO(g)]\ [O_2(g)]^{1/2}}{[PuO_2\ (g)]}$$

La pression partielle $[PuO\ (g)]$, plus élevée que $[PuO_2(g)]$ et plus sensible à l'effet de la stoechiométrie dans le domaine

sous-stoechiométrique, augmente donc lorsque la pression partielle d'oxygène du système diminue. Ce phénomène se manifeste d'ailleurs clairement dans le cas des pressions partielles du plutonium mesurées au-dessus de $PuO_{1,66}$ [51, 73] dont la courbe est également portée sur la figure 25.

On peut alors interpréter les pressions partielles élevées observées dans le système étudié par une diminution de la pression partielle d'oxygène, due aux produits de fission, en admettant que ceux-ci n'affectent pas l'idéalité de la solution $(U,Pu)O_{2-x}$, ce qui est raisonnable étant donné leur faible concentration.

Les résultats du premier cycle expérimental peuvent ainsi être expliqués par une valence moyenne très basse du plutonium. En effet, ces résultats sont analogues à un facteur deux près, à ceux correspondant à la pression de plutonium au-dessus d'une matrice qui serait constituée par une solution de 0,75 $UO_2$ et 0,25 $PuO_{1,66}$. Ces données fixent un rapport O/(U+Pu) = 1,915 pour l'échantillon, valeur qui peut effectivement être obtenue au centre de l'aiguille irradiée (voir partie I, chapitre III).

Quant aux résultats du deuxième cycle, ils correspondent à un échantillon homogène dont le rapport O/(U+Pu) doit être voisin de 1,98 ; les pressions de plutonium mesurées sont toujours plus élevées que celles de l'oxyde mixte de référence, d'environ un facteur cinq.

Ainsi, si notre modèle est correct, la diminution relative de la pression partielle d'oxygène doit être attribuée à l'influence des produits de fission.

On peut estimer l'influence des produits de fission solubles en admettant qu'ils jouent dans la solution (U-Pu-PF-O) un rôle identique à celui d'une quantité équivalente de $Pu_2O_3$. On détermine ainsi une valence hypothétique du plutonium correspondant à un rapport O/M = O/(U+Pu+PF sol), où Pu+PF sol = Pu fictif. Dans l'échantillon que nous analysons, on calcule ainsi un rapport O/M = 1,94 et une concentration de Pu fictif = 30 %.

En gardant la valence de l'uranium égale à + 4, la valence moyenne de Pu fictif devient 3,670.

D'après MARKIN [18, 19], un tel changement par rapport à l'oxyde de référence se traduit à 2000°K par une augmentation de l'énergie molaire partielle d'oxygène de 15 Kcal correspondant à un $\Delta \log P_{O_2} = - 1,3$. Cette variation de pression partielle d'oxygène se trouve en bon accord avec l'augmentation de la pression partielle en plutonium que nous avons observée.

Il est évident alors que le rapport O/U+Pu calculé correspondant au premier cycle est trop bas.

Tension de vapeur de l'américium.- L'américium est dosé à l'aide de la raie du spectre alpha qui a son maximum d'intensité à 5,49 MeV. Cette raie correspond à $^{241}Am$ (5,45 et 5,49 MeV). La contribution possible de $^{238}Pu$ qui a une désintégration alpha de même énergie (5,46 et 5,50 MeV) a été négligée, nous estimons que son influence dans le calcul de la pression d'américium est inférieure à 1 %. Les résultats numériques de comptage sont reportés dans le tableau 3.

Les résultats des calculs de tensions de vapeur de l'américium (en admettant une vaporisation de $AmO_2$) sont présentés dans le tableau 25 et portés pour les deux cycles de mesures sur la figure 26. Les expressions analytiques de ces points correspondent aux équations :

$$\text{1er cycle : } \log P(atm) = - \frac{0,26237.10^5}{T} + 4,68 \text{ (courbe b, fig. 26)}$$

$$\text{2ème cycle: } \log P(atm) = - \frac{0,25875.10^5}{T} + 4,34 \text{ (courbe a, fig. 26)}$$

Ces résultats sont analogues à ceux du plutonium : on trouve des pressions plus élevées pour le premier cycle de mesures et on constate un phénomène d'homogénéisation au début du deuxième cycle.

Pour interpréter les résultats, nous nous référons aux mesures d'ACKERMANN [74] ; on trouve que les pentes relatives à nos mesures sont proches de celles données pour "AmO" dans la littérature. Les valeurs très basses observées pour les pressions

partielles d'Am s'expliquent par la faible concentration d'américium dans la solution solide.

Par le calcul d'évolution des atomes lourds (tableau 21) on connaît la concentration en américium. On peut alors comparer nos résultats avec ceux de la littérature :

sur la figure 26, les courbes à comparer sont présentées avec deux échelles différentes décalées par un facteur de $10^3$.

Tension de vapeur du curium.- Le curium est dosé à l'aide de la raie du spectre alpha qui a son maximum d'intensité à 6,12 MeV et qui correspond au $^{242}Cm$ (6,07 et 6,12 MeV). Comme le $^{242}Cm$ est le seul isotope de cet élément qui se forme en concentration appréciable et comme il n'y a aucune interférence d'autres raies, les résultats de comptage (tableau 23) sont directement transformés en unités de poids sans correction ultérieure.

Les tensions de vapeur, calculées en admettant la vaporisation de $CmO_2$, sont données dans le tableau 26. Ces valeurs expérimentales et la courbe calculée sont reportées sur la figure 27. Cette figure montre que tous les points expérimentaux des deux cycles, à l'exception des mesures 53 à 56, 60 et 61, suivent la même loi :

$$\log P(atm) = - \frac{0,30007.10^5}{T} + 2,46$$

sur la même figure 27 est portée la courbe donnée par la littérature pour la vaporisation de $Cm_2O_3$ [75]. Les courbes sont portées sur la figure avec un décalage de $10^4$, pour faciliter la discussion basée sur la loi de RAOULT.

Discussion des résultats de tensions de vapeur des éléments du groupe des actinides

La discussion porte essentiellement sur le mode de vaporisation et sur la concentration des éléments étudiés dans la matrice du combustible.

Dans l'analyse des tensions de vapeur de $Cm_2O_3$, qui a été faite par les auteurs cités [75], il a été démontré que le curium se trouve dans la phase gazeuse principalement à l'état

libre. Etant donné la constante de dissociation de CmO, qui a été également calculée dans ce travail, on peut admettre que dans notre système, où les pressions partielles d'oxygène sont très basses, l'équilibre de la dissociation se trouve déplacé largement du côté du métal. Ainsi, la vaporisation de curium n'est pas affectée par la pression partielle d'oxygène au-dessus du système, ce qui explique la courbe unique que nous avons trouvée pour les deux cycles expérimentaux. Ainsi, dans le cas du curium, les conditions sont les plus favorables pour calculer la concentration de cet élément dans la matrice. Par comparaison avec la courbe de référence de tensions de vapeur de $Cm_2O_3$ pur, dont la pente est en bon accord avec celle calculée à partir de nos mesures, on trouve une concentration atomique de curium de $6,8.10^{-6}$ par rapport à l'ensemble des atomes lourds de la matrice. Si on compare cette concentration aux résultats des calculs d'évolution en atomes lourds (figure 24), il est évident que la concentration initiale de $^{241}Am$, précurseur direct de $^{242}Cm$, n'a pas pu être nulle. L'hypothèse d'une concentration initiale estimée à 3 g (Am)/Kg (Pu) donne, pour l'époque de ces expériences, une concentration de $^{242}Cm$ de l'ordre de grandeur observé ($1,4.10^{-6}$). Ce qui détermine ainsi la concentration d'américium dans notre échantillon. Il faut noter que cette concentration n'est pas très sensible à la concentration initiale de $^{241}Am$. Ainsi la concentration finale calculée de $1,36.10^{-3}$ (atomique) est comparée aux résultats expérimentaux de tensions de vapeur de Am. On peut le faire en appliquant la loi de RAOULT aux résultats d'ACKERMANN : on trouve que, dans le domaine des températures mesurées, la courbe "AmO" tombe au-dessus de notre courbe expérimentale et celle de "$AmO_2$" au-dessous. A 2000°K, la tension de vapeur mesurée a une valeur qui est 10 fois plus basse que celle relative à "AmO".

L'interprétation de ces résultats est identique à celle donnée pour les tensions de vapeur du Pu. ACKERMANN a obtenu ses résultats en évaporant $PuO_{2-x}$ contenant de l'américium. Sa courbe "$AmO_2$" correspond à la vaporisation de $PuO_{1,92}$ en cellule de tungstène, celle d' "AmO" a été obtenue en évaporant $PuO_{1,61}$ d'une enceinte en tantale.

Nos mesures portent sur un échantillon de O/U+Pu = 1,98, équivalent à $PuO_{1,92}$, évaporé d'une cellule en tungstène et les résultats confirment que la pression partielle d'oxygène de notre système est fonction de O/M = O/(U+Pu+PF sol) plutôt que de O/U+Pu.

III.3.2 Tension de vapeur des éléments dosés par leur rayonnement gamma

Les dosages sont effectués à partir des spectres du rayonnement gamma, mesurés à l'aide du détecteur Ge/Li (voir chapitre II.3, partie 2).

Les coefficients de correction nécessaires pour transformer les données de comptage en poids des éléments respectifs qui se sont déposés sur la cible, sont présentés dans le tableau 27.

Tension de vapeur du césium.- Les tensions de vapeur du Cs ont été mesurées dans le domaine de températures compris entre 1070° et 2000°K. Le césium est un des produits de fission les plus volatils ; aussi, les résultats sont obtenus seulement au cours du premier cycle expérimental.

Le poids de césium déposé sur la cible peut être dosé soit sur la base de l'intensité de la raie gamma de 662 KeV, correspondant à $^{137}Cs$, soit sur la base de la raie de 796 KeV correspondant à $^{134}Cs$.

Les données de comptage sont rassemblées dans le tableau 28 et les tensions de vapeurs sont calculées en admettant la vaporisation de césium métallique. Ces calculs sont présentés dans les tableaux 29 et 30 et reportés sur les figures 28 et 29 ; d'après l'intensité de $^{137}Cs$, on calcule :

$$\log P(atm) = - \frac{0,12423.10^5}{T} + 1,047 \quad (1070\text{-}1600°K)$$

et, d'après l'intensité de $^{134}Cs$ :

$$\log P(atm) = - \frac{0,11974.10^5}{T} + 0,626 \quad (1070\text{-}1600°K)$$

Au-delà de 1600°K, on constate une chute de la tension de

vapeur en césium.

La valeur de d log P/d(1/T) des deux courbes est en bon accord ; les pressions partielles déduites de l'intensité de $^{134}Cs$ sont inférieures d'un facteur 2,5 par rapport à celles déduites de la mesure de $^{137}Cs$. Ni la pente, ni l'ordre de grandeur des pressions mesurées ne correspondent à des valeurs de tensions de vapeur de Césium pur ou de ses composés, telles qu'elles sont données par la littérature [76, 77].

Le fait que les pressions déterminées à partir des dosages de $^{134}Cs$ sont inférieures à celles provenant de la mesure de $^{137}Cs$, peut s'expliquer par un comportement différent des précurseurs de ces isotopes. En effet, le $^{134}Cs$ est un produit de capture de $^{133}Cs$ qui se forme presque exclusivement par la décroissance de $^{133}Xe$, tandis que le $^{137}Cs$ est un produit de fission qui se forme également en quasi totalité par l'intermédiaire de $^{137}Xe$. Or, les périodes des deux isotopes du xénon sont très différentes : 5,27 jours pour $^{133}Xe$ et 3,9 mm pour $^{137}Xe$. Par conséquent, l'isobare 133 a ainsi une probabilité plus élevée d'être relâché du solide.

Il faut noter que la composition isotopique du césium qui a été utilisée pour calculer les activités spécifiques était la composition théorique et des différences possibles dans la cinétique de relâchement entre les précurseurs de xénon et les isotopes de césium, n'ont pas été prises en compte.

Tensions de vapeur d'antimoine.- Les tensions de vapeur d'antimoine sont mesurées dans le domaine de températures compris entre 1070° et 2000°K. Les poids déposés sur la cible ont pu être déterminés à l'aide de l'intensité gamma de deux raies différentes de l'isotope $^{125}Sb$.

Les données de comptage sont rassemblées dans le tableau 31 ; à l'aide des coefficients de correction du tableau 27 et en admettant la vaporisation de l'antimoine métallique, les tensions de vapeurs ont été calculées (tableaux 32 et 33). Ces résultats sont reportés dans les figures 30 et 31 et les expressions suivantes ont été calculées :

d'après la raie de 176 KeV :

$$\log P\,(atm) = -\frac{0{,}12398.10^5}{T} - 0{,}18\ (1070° - 1600°K)$$

et d'après la raie de 428 KeV :

$$\log P\,(atm) = -\frac{0{,}12539.10^5}{T} - 0{,}28\ (1070° - 1600°K)$$

Comme dans le cas du césium, on observe une chute de la tension de vapeur d'antimoine à partir de 1600°K. Seules les mesures du début du premier cycle expérimental ont pu être exploitées.

Les deux courbes, obtenues indépendamment, sont en excellent accord ; leur pente correspond à la chaleur de vaporisation de l'antimoine [78, 79] ; cependant les pressions observées sont inférieures d'un facteur de l'ordre de $10^7$ par rapport aux données de la littérature.

Ce résultat exclut la vaporisation directe d'antimoine, soit d'un alliage de produits de fission métalliques, soit de la matrice. On note, d'autre part, une similarité entre les tensions de vapeur du césium et de l'antimoine : les pentes sont très voisines et la chute des pressions de vapeur se produit, dans les deux cas, à la même température, aux environs de 1600°K.

Il pourrait alors s'agir de la vaporisation d'un composé complexe de Cs-Sb et, dans le cas où cette hypothèse est prise en considération, il faudrait admettre la possibilité de la participation du tellure, formant un composé du même type Cs-Te ou même un composé mixte du type Cs (Sb-Te). Malheureusement, les périodes des isotopes instables de tellure sont trop courtes pour permettre un dosage par nos méthodes d'analyse.

Il faut noter que dans la littérature, aucune indication de l'existence d'un tel composé dans le combustible irradié n'a été donnée.

Tensions de vapeur du cérium.- La tension de vapeur du cérium a été mesurée dans le domaine de températures allant de 1500° à 2330°K. Les poids déposés sur les cibles sont calculés à partir

de l'intensité de la raie gamma de 132 KeV correspondant à $^{144}Ce$.

Les poids calculés, ainsi que les tensions de vapeur obtenues en utilisant les constantes indiquées dans le tableau 27 et en admettant la vaporisation de $CeO_2$, sont présentés dans le tableau 34.

Pour les deux cycles expérimentaux, on trouve les équations suivantes :

$$\text{premier cycle : } \log P(atm) = - \frac{0,19405.10^5}{T} + 2,47$$

$$\text{deuxième cycle: } \log P(atm) = - \frac{0,22792.10^5}{T} + 3,44$$

Les résultats sont reportés sur la figure 32 ; le fait d'obtenir deux courbes distinctes indique que la vaporisation du cérium comme celle du plutonium et de l'américium, dépend de la pression partielle d'oxygène au-dessus du système, qui varie au cours du processus d'homogénéisation.

L'équation relative au deuxième cycle, qui correspond au produit homogène, est en bon accord avec les données de vaporisation de $CeO_2$ de la littérature [80]. D'où l'on déduit en comparant les deux courbes, l'activité de $CeO_2$ dans la matrice du combustible analysé, soit $5.10^{-3}$. Cette valeur doit être comparée à la concentration calculée de $1,5.10^{-3}$ (tableau 20), ce qui représente un accord convenable.

Tensions de vapeur du ruthénium.- La tension de vapeur du ruthénium a été mesurée dans le domaine de température compris entre 1070° et 2330°K. Les poids déposés sur les cibles ont été calculés à partir de l'intensité de la raie gamma de 512 KeV du $^{106}Rh$. Ce nuclide est le descendant de $^{106}Ru$ et, étant donnée sa courte période (30sec.), représente correctement l'intensité de son précurseur.

Les données de comptage et les tensions de vapeur calculées sont présentées dans le tableau 35. Les poids et les tensions de vapeur ont été obtenus à l'aide des données du tableau 27, en admettant une vaporisation de ruthénium métallique. Les pressions

sont reportées sur la figure 33 et l'analyse par la méthode des moindres carrés sur l'ensemble des mesures des deux cycles (à l'exception des points 19, 34, 36, 52 et 53, qui n'ont pas été pris en compte) donnent la droite d'équation :

$$\log P(atm) = - \frac{0,28603.10^5}{T} + 4,97$$

qui est en accord avec le résultat donné par la littérature [81]; celui-ci, obtenu par la méthode de LANGMUIR, est également montré sur la figure 33. Le ruthénium s'évapore ainsi à partir de l'état métallique où, en admettant un coefficient d'activité égal à l'unité, il se trouve à une concentration comprise entre 30 % et 50 % atomique. Ce résultat paraît correct, étant donné le comportement du ruthénium dans le combustible, tel que nous l'avons noté dans les chapitres II.3 et IV de la première partie. Ce mode de vaporisation explique la cohérence des deux cycles de mesures et l'absence d'effet du processus d'homogénéisation sur les pressions de vapeur du ruthénium.

Tensions de vapeur du niobium.- Les tensions de vapeur du niobium ont été mesurées à l'aide de l'intensité de la raie gamma de 764 KeV qui correspond au $^{95}$Nb. Cet isotope représente l'élément niobium dans le combustible irradié.

Les données de comptage sont présentées dans le tableau 36. Les valeurs sont corrigées pour tenir compte de la courte période du $^{95}$Nb (35 j). Les poids et les tensions de vapeur, qui sont également portés dans le tableau 36, ont été calculés en utilisant les données du tableau 27 et en admettant une vaporisation de niobium métallique.

Les résultats sont reportés sur la figure 34 (courbe b). Les valeurs relatives au deuxième cycle expérimental sont décrites par l'équation :

$$\log P(atm) = - \frac{0,25238.10^5}{T} + 0,66$$

Les valeurs mesurées au cours du premier cycle sont à basse température, supérieures à celles du deuxième cycle d'environ

un facteur dix ; à partir de 2100°K, l'écart entre les tensions de vapeur des deux cycles diminue. Sur la même figure 34, sont également portés les résultats (courbe c) des mesures des tensions de vapeur du niobium au-dessus de $ZrO_2$ irradié /82/.

Les pentes des deux courbes (b) et (c) sont en bon accord. La courbe qui correspond au combustible irradié est inférieure d'un facteur 5 environ.

Le niobium que nous mesurons s'est formé au cours de la période de refroidissement, car le niobium initialement présent à la fin de l'irradiation a disparu par décroissance radioactive. Ainsi, au début de notre expérience le niobium se trouve à l'emplacement du zirconium, c'est-à-dire dans la matrice.

Le potentiel d'oxygène du système étudié est cependant tel que le niobium se trouve à l'état métallique. Il est alors probable qu'au cours du chauffage, le niobium s'allie aux inclusions métalliques. Ceci explique la différence entre les résultats des deux cycles de mesures. Une comparaison avec d'autres résultats de la littérature n'est pas possible, étant donné le désaccord entre les différents auteurs /83, 84/.

III.3.3 Dosage par comptage du rayonnement bêta

Tensions de vapeur du strontium.- En plus des rayonnements alpha et gamma, les dépôts de vaporisation émettent également un intense rayonnement bêta. Quelques cibles sélectionnées ont ainsi été analysées par spectrométrie bêta au Laboratoire de Métrologie de la Radioactivité du CEN-Saclay. Les spectres obtenus ont montré que le rayonnement bêta peut être utilisé pour doser le strontium déposé, sur la base de l'équilibre radioactif $^{90}Sr/^{90}Y$.

La spectrométrie bêta étant exclue pour les mesures de routine, nous avons adopté une technique de comptage global qui nous permet d'éliminer les contributions parasites. Ceci se fait à l'aide d'un absorbeur placé entre la source et le détecteur, dont l'épaisseur est choisie de façon que la partie du spectre du rayonnement bêta à éliminer, c'est-à-dire les basses énergies,

soit absorbée [85, 86].

La figure 35 montre la variation de l'intensité (log I) en fonction de l'épaisseur de l'absorbeur en aluminium. On note que les énergies des particules bêta des dépôts atteignent une énergie de 5 MeV. L'activité constante au bout de chaque courbe est due au bruit de fond gamma. Les analyses définitives ont été effectuées avec des épaisseurs d'absorbeurs de 800 et 931 mg/cm$^2$, qui ne laissent passer que les rayonnements bêta d'énergie supérieure à 1,7 et 2,0 MeV, respectivement.

Le tableau 37 regroupe les nuclides de produits de fission dont le rayonnement bêta dépasse l'énergie de 1 MeV. Après le refroidissement qu'a subi l'échantillon, seuls $^{106}$Rh et $^{144}$Pr, descendants de $^{106}$Ru et $^{144}$Ce, peuvent interférer dans la mesure de Sr/$^{90}$Y. La spectrométrie bêta, comme la figure 35 le montre, indique donc que leur contribution peut être négligée.

Les résultats de comptage sont donnés dans le tableau 38. L'élément strontium est représenté dans le combustible par les isotopes $^{88}$Sr, $^{89}$Sr et $^{90}$Sr, et le rapport de $^{90}$Sr à la somme des atomes de strontium est 0,58.

Les tensions de vapeur du strontium ont été calculées sur la base de ces données, en admettant la vaporisation de SrO. Les résultats du calcul sont rassemblés dans le tableau 39 et reportés sur la figure 36. Seul le deuxième cycle de mesures a été analysé, et les tensions de vapeur sont décrites par l'expression :

$$\log P\,(\text{atm}) = \frac{0{,}24428.10^5}{T} + 4{,}97 \quad (1800°K - 2230°K)$$

Si nous comparons ces résultats à ceux donnés par la littérature [87] (voir figure 36) pour les tensions de vapeur de SrO, on trouve que les variations en fonction de la température sont en bon accord. La concentration de SrO déduite de l'écart entre les deux courbes montre qu'elle est supérieure par un facteur 5 à celle qui aurait été obtenue si SrO était en solution idéale dans la matrice.

Nos résultats ne confirment pas l'hypothèse, proposée par différents auteurs [36,50], de la formation de zirconate de strontium constituant une phase distincte dans le combustible irradié, car il n'y a pas de corrélation entre les concentrations de zirconium et de strontium dans les dépôts et la concentration de SrO déduite par application de la loi de RAOULT est trop faible, de plus d'un ordre de grandeur. D'ailleurs une telle phase n'a jamais pu être mise en évidence ni dans un combustible irradié, ni dans une simulation.

III.4 Synthèse des résultats et discussion

Les résultats décrits dans les chapitres précédents permettent d'interpréter le comportement du combustible d'oxydes mixtes sous irradiation.

Dans la plupart des cas, nous avons observé une mise en équilibre de l'échantillon au cours du traitement thermique, ce qui prouve l'hétérogénéité initiale de l'échantillon, notamment l'hétérogénéité du paramètre qui fixe la pression partielle d'oxygène d'équilibre. Nous rappelons qu'il a été mis en évidence [19, 44, 45] que sous l'influence du gradient thermique, un gradient de stoechiométrie s'établit. Ce gradient, pour sa part, modifie la composition locale du combustible dans les zones chaudes principalement et influe sur les modes de vaporisation des éléments mesurés.

Les résultats obtenus pour l'échantillon homogène ont prouvé l'influence des produits de fission, notamment de ceux qui sont solubles dans la matrice, sur le comportement du combustible. Cette influence, qui change les données thermodynamiques du système, n'a pas été prise en compte jusqu'ici dans les travaux qui établissent les prévisions à partir des données thermochimiques, concernant le comportement du combustible au cours d'irradiation [18, 19, 44, 88].

Les propriétés dominantes sont celles de la matrice, dont le potentiel d'oxygène diminue en cours d'irradiation, comme résultat direct de la dissolution de produits de fission dans

la matrice. La diminution de $\Delta\bar{F}(O_2)$ détermine à son tour l'état chimique de quelques produits de fission.

Il faut ainsi admettre que le niobium et, encore plus, le molybdène, se trouvent au moins dans les parties du combustible dont la température permet la dissolution des produits de fission, sous forme métallique.

La conséquence la plus importante est l'augmentation de la pression partielle en plutonium, ce qui peut accélérer la migration du plutonium par la phase gazeuse. La présence de césium dans la phase vapeur à des températures relativement élevées, était inattendue. Son mode de vaporisation, ainsi que la corrélation avec la vaporisation d'antimoine, indique qu'une partie du césium ne se trouve pas à l'état métallique, comme la stabilité d'équilibre métal-oxyde métallique le laisse prévoir.

Le mode de vaporisation du strontium est également surprenant mais la connaissance actuelle du système (UPu)O-SrO n'est pas suffisante pour interpréter les résultats. Le ruthénium, seul représentant des éléments qui forment la phase métallique du combustible, a manifesté le comportement auquel on pouvait s'attendre.

# CONCLUSION

La connaissance du potentiel d'oxygène des constituants d'un combustible d'oxydes mixtes d'uranium et de plutonium, permet a priori, la classification des produits de fission par rapport à la matrice $(UPu)O_2$. Cette classification a été confirmée au cours de cette étude.

La dissolution des produits de fission dans la matrice, notamment celle de terres rares, entraîne cependant une variation du potentiel d'oxygène du système, rendant la nouvelle matrice plus stable qu'une matrice d'oxydes purs ayant des mêmes rapports Pu/U+Pu et O/U+Pu. Cette influence des produits de fission a pu être déterminée qualitativement dans l'étude de la variation en fonction de la température des tensions de vapeur des éléments plutonium, américium et cérium.

Malgré la complexité du système, les résultats montrent que la méthode de mesure des tensions de vapeur est applicable à la fois comme moyen analytique et comme méthode de mesure des propriétés thermodynamiques fondamentales du combustible irradié.

Pour une interprétation plus quantitative, une connaissance plus exacte de la phase solide ou de la phase vapeur est indispensable. Des expériences sur des combustibles simulés comprenant notamment des mesures de tensions de vapeur à l'aide d'un spectromètre de masse et des déterminations de $\Delta\bar{F}(O_2)$ à l'aide d'une pile à électrolyte solide, doivent accompagner la mise au point des mesures des pressions de vapeurs des combustibles irradiés.

Appliquant les méthodes de mesure décrites dans ce travail à des microprélèvements de combustibles irradiés, des variations relatives de concentration le long du gradient thermique peuvent être déterminées. Ces valeurs peuvent être rendues quantitatives par une mesure complémentaire et indépendante, comme la détermination de O/U+Pu et de Pu/U+Pu, effectuée sur un échantillon analogue de combustible irradié.

Finalement, la méthode d'analyse radiochimique doit être étendue à un plus grand nombre de constituants, par une réactivation des dépôts de vapeur dans un flux de neutrons thermiques. Ainsi, des produits de fission importants comme Mo, Te et tous les métaux de terres rares, peuvent être analysés. De plus, comme il a déjà été dit, la détermination de l'uranium par son rayonnement X peut être envisagée et serait très utile pour confirmer notre hypothèse sur l'idéalité de la solution solide /¯U, Pu, Pf, O_7.

Signalons enfin deux possibilités supplémentaires d'études offertes par l'installation, qui présenteraient un grand intérêt technologique : la construction d'un four permettant de réaliser des dépôts à des températures inférieures à 1000°K donnerait la possibilité de suivre de façon plus précise les produits de fission volatils et, par ailleurs, d'analyser les pressions d'équilibre du système constitué par le combustible irradié et la gaine, dans des conditions voisines de celles de l'irradiation.

BIBLIOGRAPHIE

/1/ M. SHAW, "Ceramic Technology Needs for the United States Advanced Reactors Program" - Ceramic Nuclear Fuels, ANS-Proc. Int. Sym. Wash. (1969) p. 9.

/2/ H. HOLLECK, H. KLEYKAMP, "Zur Stöchiometrieverschiebumg in einem oxidischen Brennelement bei hohem Abbrand" Rapport KFK-1181 (1970)

/3/ M.E. MEEK, B.F. RIDER,"Summary of Fission Products Yields of U-235, U-238, Pu-239, Pu-241 at Thermal Fission Spectrum and 14 MeV Neutron Energies" - Rapport APED-5398 A (1968)

/4/ C.A. ANDERSON, "Fission Product Yields from Fast Fission of Pu-239" - Rapport LA-3383 (1965)

/5/ R.C. BOLLES, N.E. BALLOU, "Calculated Activities and Abundances of U-235 Fission Products", Nucl. Sci. and Eng. 5 (1959) p. 156

/6/ L. BURRIS Jr, I.G. DILLON, "Estimation of Fission Product Spectra in Discharged Fuel from Fast Reactors" - Rapport ANL-5742 (1956)

/7/ E. RUTHERFORD, J. CHADWICK, C.D. ELLIS, "Radiation from Radioactive Substances", Cambridge University Prees (1930)

/8/ M.D. GOLDBERG, S.F. MUGHABGHAB, S.N. PUROHIT, "Neutron Cross Sections" - RapportBNL-325 (1966)

/9/ J.J. H. BERLIJN, R.E. HUNTER, C.C. CREMER, "Neutron Cross Sections for U-235 and U-238 in the Energy Range 1 KeV to 14 MeV"- Rapport LA-3527

/10/ J.B. CZIRR, J.S. LINDSEY, "A Measurement of the Capture to Fission Ratio for Pu-239" Nucl. Sci. and Eng. 41 (1970) p. 56

/11/ H.R. Von GUNTER, "Distribution of Mass in Spontaneus and Neutron Induced Fission" - Actinide Rev.1(1969), 275

/12/ B. BARRE, "Picfée Programme d'intégration de courbes de fissions élémentaire tenant compte de l'évolution des nuclides fissiles"- Note CEA-N-1023 (1969)

/13/ R. de TOURREIL, "Programme de calcul de l'activité des produits de fission" - Note CEA-N-824 (1967)

/14/ S. KATKOFF, "Fission Product Yields from U,Pu and Th" Nucleonics, April (1968)

/15/ G.R. CROCKER, "Fission Product Decay Chains : Schematics with Branching Fractions, Half Lifes and Litterature References", Rapport USNRDL-TR-67 III (1967)

/16/ "The Plutonium-Oxygen and Uranium-Plutonium-Oxygen systems : A Thermochemical Assessment" - Int. Atomic Energy Agency, Tech. Report series No 79, Vienna (1967) Ref. 9, 125, 128, voir aussi :

T.L. MARKIN, R.S. STREET, "The Uranium-Plutonium-Oxygen Ternary Phase Diagram" Journ. Of Inorg. and Nucl. Chem. 29, (1967) 2265

/17/ Réf. 9 de la référence précédente

/18/ T.L. MARKIN, E.J. Mc IVER, "Thermodynamic and Phase Studies for Plutonium and Uranium-Plutonium Oxides with Application to Compatibility Calculation" - Plutonium 1965, Proc. of the 3rd Int. Conf. of Plutonium, London (1965) p. 845

/19/ M.H. RAND, T.L. MARKIN, "Some Thermodynamic Aspects of $(U,Pu)O_2$ Solid Solutions and their Use as Nuclear Fuels" - Thermodynamics of Nuclear Materials, Proc. of a Symp. Vienna (1967), p. 637

/20/ A. GLASSNER,"The Thermodynamical Properties of Oxides, Fluorides and Chlorides to 2500°K" - Rapport ANL-5750

/21/ Handbook of Chemistry and Physics, 49th Edition (1968-69) Chapitre D-22

/22/ B.G. CHILDS, "Fission Product Effects in Uranium Dioxide" Journ. Nucl. Mat. 9 (1963) 217

/23/ M.T. ROBINSON, "On the Chemistry of the Fission Process in Reactor Fuels Containing $UO_2$ and $UF_4$" Nucl. Sci. and Eng. 4 (1958) 263

/24/ G. DEAN, H. MIKAILOFF, R. LALLEMENT, Nouveau traité de chimie minérale, tome XV, fascicule 5, Masson Ed(1970)

/25/ R.S. BARNES, "The Influence of Neutron Radiation upon Plutonium Containing Solids", Plutonium 1965, p. 914

/26/ D.R. O'BOYLE, F.L. BROWN, J.E. SANECKI, "Microanalysis of Solid Fission Products in Mixed Oxide Fuels Irradiated in EBR-II", ANS-TRANS 10 (1967) 462, voir aussi : Journ. Nucl. Mat. 29 (1969) 27

/27/ D.R. O'BOYLE, F.L. BROWN, "Microanalysis of Fission Product Ingots Formed in U-Pu-Oxide Irradiated in EBR-II Journ.of Nucl. Mat. 35 (1970) 257, voir aussi : ANS-TRANS 11 (1968), 101

/28/ N.R. STALICA, C.A. SEILS, C.E. CROUTHAMEL, "Electron Probe Microanalysis of Irradiated Oxide Fuels" Ceramic Nuclear Fuels Proc. of the Int. Sym. of the Am. Cer. Soc. Nuclear Division, Washington (1969) p. 211

/29/ J.I. BRAMMANN, R.M. SHARPE, D. THOM, G. YATES, "Metallic Fission Product Inclusions in Irradiated Oxide Fuels" Jour. Nucl. Mat. 25 (1968), 201

/30/ B.T. BRADBURY, J.T. DEMANT, P.M. MARTIN, D.M. POOLE "Electron Microprobe Analysis of Irradiated $UO_2$" Jour. Nucl. Mat. 17 (1956), 227

/31/ B.T. BRADBURY, J.T. DEMANT, P.M. MARTIN, "Solid Fission Products in Irradiated Uranium Dioxide" - Rapport AERE-5149

/32/ F. HUND, U. PEETZ, "Untersuchungen der Systeme $La_2O_3$, $Nd_2O_3$, $Sm_2O_3$, $Y_2O_3$, $Sc_2O_3$ mit $U_3O_8$" - Z. Anorg. Allg. Chem. 271 (1952), 6

/33/ B. GROSS, "Beitrag zur Untersuchung des Dampfdruckverhaltnes Schmelzflüssiger Oxide im Hindblick auf ihre Verwendung in Hochtemperatur - Kernspaltreaktoren" - Rapport Tubix 4 (1966)

/34/ F. SCHMITZ, "Analysis of a Simulation of Irradiated $(U,Pu)O_2$' Int. Symp. (voir réf. /1/, p. 32)

/35/ N. OI, A. TANABE, "Fission Product Segregation at the Surface of Irradiated $UO_2$ Particles" - Jour. of Nucl. Mat. 25 (1968), 288

/36/ E.A. AITKEN, "Behavior of Fission Products in Urania Fuels" 1966, (voir réf. 50).

/37/ F. ANSELIN, W.E. BAILY , "The Role of Fission Products in the Swelling of Irradiated $UO_2$ and $(U,Pu)O_2$ Fuels" ANS-TRANS (1968), 103

/38/ F. SCHMITZ, G. DEAN, M. HALACHMY, "Application of Lattice Constante Measurements for Stoichiometric Determination in Irradiated U-Pu mixed oxide fuels" - Jour. Nucl. Mat. à paraître

/39/ N. OI, T. OHNO, K. NAITO, "Relocation of Fission Products and Pu in Irradiated $UO_2$ Pellet" - Jour. Nucl. Sci. and Tech. 1 (1964), 284

/40/ R.E. SCAVDAHL, M.D. FRESHLEY, W.J. BAILEY, S. GOLDSMITH, "Irradiation Properties of High Energy Rate Pneumatically Impact $UO_2$ - $PuO_2$ Fuels" Plutonium 1965, p. 1013

/41/ J.H. DAVIES, R.F. BOYLE, J.F. HANUS, "Fission Product and Plutonium Redistribution in High Performance $UO_2$ Fuel Rods" - Rapport GEAP-5100-4 (1966)

/42/ H. MIKAILOFF, J.C. VAN CRAEYNEST, R. LALLEMENT, "Effect of Density and Stoichiometry on Oxide Fuel Behavior" - Int. Symp. (voir réf. 1), p. 126

/43/ D.R. de HALAS, G.R. HORN, Jour. Nucl. Mat. 8 (1963), 207

/44/ E.A. AITKEN, S.K. EVANS, "Thermodynamic Behavior of Plutonium Oxide Systems in Temperature Gradient" Plutonium 1970, p. 772

/45/ P.O. PERRON, "Oxygen Redistribution in Uranium Dioxide Fuels" - Jour. of Nucl. Mat. 27 (1968), 237

/46/ J.H. DAVIES, R.E. BOYLE, B. WEIDENBAUM, J.E. HANSON "On the Composition of Metallic Ingots Formed in High-Performance Ceramic Fuel Elements" - ANS-TRANS Annuel Meeting (1966), p. 63

/47/ A. MARTIN, L. ARLES, "Préparation métallographique de carbures, nitrures et oxydes frittés à base d'uranium et de plutonium"- Note CEN - 848 (1967)

/48/ L. ARLES, A. MARTIN, "Préparation, attaque et coloration des oxydes mixtes d'uranium et de plutonium à différentes teneurs en Pu" - Note CEA-N 1045 (1969)

/49/ F. SCHMITZ, G. DEAN et al, "Influence des produits de fissions sur les propriétés des oxydes mixtes $(U,Pu)O_{2\pm x}$" - Int. Meeting ANS-Karlsruhe (1970)

/50/ F. ANSELIN, "The Role of Fission Products in the Swelling of Irradiated $UO_2$ and $(U,Pu)O_2$ Fuel" - Rapport GEAP-5583 (1969)

/51/ R. PASCARD, Publication interne CEA (1967)

/52/ J.E. BATTLES, W.A. SHINN, P.E. BLACKBURN, R.K. EDWARDS, "A Mass Spectrometric Investigation of the Volatilization Behavior of $(U_{0.8}Pu_{0.2})O_{2-x}$" - Plutonium 1970, p. 733

/53/ R.W. OHSE, W.M. OLSEN, "Evaporation Behavior of Substoichiometric $(U,Pu)O_2$"- Plutonium 1970, p. 743

/54/ O. KUBASCHEWSKI, "Free Energy and Phase Diagrams" - Thermodynamics of Nucl. Mat. int. Atomic Energ. Agency, Vienna 1962

/55/ P.W. GILLES, "Thermodynamics of Vaporisation of Nuclear Materials at High Temperatures" - COO-1140-129, paper SM-66/2 (1965)

/56/ A.N. NESMEYANON, "Vapor Pressure of the Chemical Elements" Elsevier Publishing Company (1963)

/57/ O. KUBASCHEWSKI, E.LL. EVANS, C.B. ALCOCK, "Metallurgical Thermochemistry", Fourth Edition, Pergamon Press (1967)

/58/ K.K. KELLEY, "The Free Energies of Vaporisation and Vapor Pressures of Inorganic Substances" - NBS 383 (1935)

/59/ "Thermochemical Tables" - JANAF Pb-168-370

/60/ K.K. KELLEY, E.G. KING, "Contribution to the Data on Theoretical Metallurgy" - BNS 592

/61/ K.K. KELLEY, "Contribution to the Data on Theoretical Metallurgy" - BNS 584

/62/ I. LANGMUIR, Phys. Rev. (1913), 329(voir aussi réf. 56.57)

/63/ M. KNUDSEN, "The Kinetic Theory of Gases" John Wiley and Sons, Inc. (1934), (voir aussi réf. 56. 57).

/64/ F. TROMBE, P. CARO, M. BLAISE, "Données récentes sur les pressions de vapeur des éléments métalliques et quelques métalloides réfractaires" - Revue des Hautes températures 1 (1965), 1

/65/ T.L. MARKIN, E.C. CROUCH, "Thermodynamic Data for U-Ce-Oxides", Jour. of Inorg. Nucl. Chem. 32 (1970), 77

/66/ B. BARRE, "Reconstitution par le calcul de spectre des $\gamma$ émis par les produits de fission" - Note CEA-N 1313 (1970)

/67/ C.E. CROUTHAMEL, "Applied Gamma-Ray Spectrometry" Pergamon Press (1960)

/68/ C.M. LEDERER, J.M. HOLLANDER, I. PERLMAN, "Table of Isotopes", John Wiley and Sons Inc., Sixth Edition (1968)

/69/ R.W. OHSE, "Mesure de la tension de vapeur du bioxyde d'uranium" - Rapport CEA-R 2871 (1965)

/70/ J.C. DE VOS, "A New Determination of the Emissivity of Tungsten Ribon" - "Relation between Brightness Temperature, True Temperature and Color Temperature of Tungsten, Luminence of Tungsten" - Physica XX (1954) 690 et 715

/71/ B. BARRE, Communication personnelle

/72/ J. POITREAU, Communication personnelle

/73/ "The Pu-O and U-Pu-O systems" Int. Atomic Energy Agency, Tech. Report series n° 79, (1967), réf.(21, 22, 63, 108)

/74/ R.J. ACKERMANN, R.L. FAIRCLOTH, M.H. RAND, "A thermodynamic Study of the Vaporisation Behavior of the Substoichiometric Plutonium Dioxide Phase", Jour. of Phys. Chem. 70 (1966), 3698

/75/ P.K. SMITH, D.E. PETERSON, "High Temperature Evaporation and Thermodynamic Properties of $Cm_2O_3$" - Rapport DP-MS 67-110 (1968)

/76/ L. HACKSPILL, An. Chim. Phys. 28 (1913), 613

/77/ A. EUCKEN, "Vapour Pressures of Metals Assessment" Metallwirtsch. 15 (1936), 63

/78/ A.T. ALDRED, J.N. PRATT, Jour. Chem. Eng. Data 8 (1963) 429

/79/ G.M. ROSENBLATT, C.E. BIRCHENALL, Jour. Chem. Phys. 35 (1961) 788

/80/ G. BENEZECH, M. FOEX, M.G. CHAUDRON, "Mesures des pressions de vapeur des oxydes de lanthanides entre 2000 -2400°C" C.R. Acad. Sc. Paris 268, Série C, 2315 (1969)

/81/ N.J. CARRERA, R.F. WALKER, E.R. PLANTE, "Vapour Pressures of Ru and Os (Langmuir Method)" - Jour. Res. NBS 68 A (1964), 325

/82/ F. SCHMITZ, M. HALACHMY, Résultats internes

/83/ R. HULTGREN, R.L. ORR, P.D. ANDERSON, K.K. KELLEY, "Selected Values of Thermodynamic Properties of Metals and Alloys", J. Wiley (1963)

/84/ V.N. VLASOV, 1960 d'après Vesmeyanou /56/

/85/ G. FRIEDLANDER, J.H. KENNEDY, "Nuclear and Radiochemistry John Wiley and Sons, Inc. (1962)

/86/ R. LINDNER, "Kern und Radiochemie" Springer-Verlag, Berlin 1961

/87/ G.E. MOORE, H.W. ALLINSON, J.D. STRUTHER, "Vapour Pressure of SrO", Jour. Chem. Phys. 18 (1950), 1572

/88/ K.E. SPEARS, A.R. OLSEN, J.M. LEITNAKER, "Thermodynamic Application to $(U,Pu)O_{2\pm x}$ Fuel Systems" - Rapport ORNL-TM-2494 (1968).

*Manuscrit reçu le 19 février 1971*

TABLEAU 1

| Nucléide | $\sigma_F$ | $\sigma_{n,\gamma}$ | $\sigma_{n,2n}$ | Période |
|---|---|---|---|---|
| U 235 | 1,41 | 0,26 | | |
| U 236 | 0,24 | 0,24 | | |
| U 237 | | 0,5 | | 6,75 j |
| Np 237 | | 0,5 | | |
| U 238 | 0,094 | 0,186 | 0,1 | |
| Np 238 | | 0 | | 50,8 h |
| Pu 238 | 0 | 0 | | 86,4 A |
| U 239 | | 0 | | 23 m |
| Np 239 | | 0 | | 2,35 j |
| Pu 239 | 1,70 | 0,199 | | |
| Pu 240 | 0,67 | 0,33 | | 6800 A |
| Pu 241 | 2,19 | 0,235 | | 133 A |
| Am 241 | | 1,035 | | 433 A |
| Pu 242 | | 0,34 | | |
| Am 242* | | 19,66 | | 152 A |
| Am 242 | 8,97 | 2,45 | | 16 h |
| Cm 242 | | 0,046 | | 163 j |
| Am 243 | | 0,225 | | 7950 A |
| Cm 243 | | | | |

Sections efficaces de fission et de capture et données nucléaires des isotopes d'uranium et des principaux nuclides transuraniens. Les sections efficaces sont données pour un flux rapide de neutrons d'énergie moyenne de 630 KeV.

TABLEAU 2

| | Type de combustible | | | | |
|---|---|---|---|---|---|
| | I | II | III | IV | V |
| Composition chimique | 20% PuO2 ou 19,81% Pu | 26,19 PuO2 ou 26% Pu | 25,18 PuO2 25,1% Pu | 21,58% PuO2 20,8% Pu | 21,85% PuO2 21,1% Pu |
| Composition isotopique | | | | | |
| U-235 | 48,15% | 44,4% | 0,3% | 0,5657% | 0,564% |
| U-238 | 32,04% | 29,6% | 74,6% | 78,6343% | 78,336% |
| Pu-239 | 19,81% | 13,4% | 19,2% | 15,9% | 16,2% |
| Pu-240 | | 2,6% | 5,1% | 4,2% | 4,2% |
| Pu-241 | | | 0,7% | 0,6% | 0,6% |
| Pu-242 | | | 0,1% | 0,1% | 0,1% |
| Energie moyenne des neutrons | 1 MeV | 630 KeV | 420 KeV | 400 KeV | 400 KeV |
| Cinétique de fission* | $4,24.10^{12}$ | $3.10^{12}$ | $5,4.10^{12}$ | $5,65.10^{12}$ | $5,89.10^{12}$ |
| Rapport $\frac{\text{fis. U-235}}{\text{fis. Pu}}$ | 1,6751 | 1,5077 | $\simeq 10^{-3}$ | | |

(*) par 1 g de (U+Pu) par seconde.

Définition et condition d'irradiation des cinq types de combustibles étudiés.

TABLEAU 3

| Isotope | Type de combustible | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | I | | II | | III, IV et V | |
| | $\sigma_C$ | $\sigma_F$ | $\sigma_C$ | $\sigma_F$ | $\sigma_C$ | $\sigma_F$ |
| U -235 | | 1,22 | 0,26 | 1,41 | 0,516 | 1,41 |
| U -238 | | 0,018 | 0,094 | 0,186 | 0,295 | 0,057 |
| Pu-239 | | 1,77 | 0,199 | 1,70 | 0,372 | 1,995 |
| Pu-240 | | | 0,33 | 0,67 | 0,401 | 0,392 |
| Pu-241 | | | | | 0,370 | 2,087 |
| Pu-242 | | | | | 0,427 | 0,374 |

Sections efficaces de fission et de capture, en barns utilisées dans les calculs.

TABLEAU 4

| Type | | I | II | | | III | | | IV | V |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| Combustion en % TCF | | 6 | 2 | 6 | 12 | 2 | 6 | 12 | 10,1 | 15,25 |
| Rapport Pu/u | Initial | 0,247 | 0,351 | | | 0,335 | | | 0,2626 | 0,267 |
| | Final | 0,233 | 0,348 | 0,340 | 0,330 | 0,333 | 0,331 | 0,331 | 0,257 | 0,253 |
| Rapport Pu/U+Pu | Initial | 0,1981 | 0,260 | | | 0,2510 | | | 0,208 | 0,2121 |
| | Final | 0,1898 | 0,2579 | 0,2536 | 0,2563 | 0,2502 | 0,2490 | 0,2490 | 0,2041 | 0,2022 |

Résumé de l'évolution de l'uranium et de plutonium dans les cinq types de combustibles étudiés.

TABLEAU 5

| Z | Elément | Isotope (A) compris dans les calculs | | | | | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 34 | Se | 77 | 78 | 79 | 80 | 82 | | | | | |
| 35 | Brx | 79 | 81 | 82 | 83 | | | | | | |
| 36 | Kr | 82 | 83 | 84 | 85 | 86 | 87 | 88 | | | |
| 37 | Rb | 85x | 87 | | | | | | | | |
| 38 | Sr | 87 | 88 | 89 | 90 | 91 | 92 | | | | |
| 39 | Y | 89 | 90 | 91 | 92 | 93 | | | | | |
| 40 | Zr | 90x | 91 | 92 | 93 | 94 | 95 | 96 | 97 | | |
| 41 | Nb | 93 | 95 | 96 | 97 | | | | | | |
| 42 | Mo | 95 | 96x | 97 | 98 | 99 | 100 | | | | |
| 43 | Tc | 99 | | | | | | | | | |
| 44 | Ru | 99 | 100 | 101 | 102 | 103 | 104 | 105 | 106 | | |
| 45 | Rh | 103 | 105 | | | | | | | | |
| 46 | Pd | 105 | 106 | 107 | 108 | 109 | 110 | 112 | | | |
| 47 | Ag | 107 | 109 | 111 | 112 | 113 | | | | | |
| 48 | Cd | 111 | 112 | 113 | 114 | 115 | 116 | | | | |
| 49 | In | 113 | 115 | | | | | | | | |
| 50 | Sn | 115 | 117 | 118 | 119 | 120 | 121 | 122 | 123 | 124 | 125 |
| 51 | Sb | 121 | 123 | 125 | 126 | 127 | 128 | 129 | | | |
| 52 | Te | 125 | 126 | 127 | 128 | 129x | 130 | 131 | 132 | | |
| 53 | I | 127 | 129 | 130 | 131 | 132x | 133 | 135x | | | |
| 54 | Xe | 130x | 131 | 132 | 133 | 134 | 135 | 136 | | | |
| 55 | Cs | 133 | 135 | 137 | | | | | | | |
| 56 | Ba | 137x | 138 | 140 | | | | | | | |
| 57 | La | 139 | 140 | 141x | 142x | | | | | | |
| 58 | Ce | 140 | 141 | 142 | 143 | 144 | | | | | |
| 59 | Pr | 141 | 143 | 144 | 145 | | | | | | |
| 60 | Nd | 143 | 144 | 145 | 146 | 147 | 148 | 149x | 150 | | |
| 61 | Pm | 147 | 149 | 151 | | | | | | | |
| 62 | Sm | 147 | 149 | 150 | 151 | 152x | 153 | 154 | 156x | | |
| 63 | Eu | 153 | 155 | 156 | 157 | 158 | | | | | |
| 64 | Gd | 155 | 156 | 157 | 158 | 159 | 160 | | | | |
| 65 | Tbx | 159 | 161 | | | | | | | | |
| 66 | Dy | 161 | | | | | | | | | |

(x) Isotopes qui n'ont pas été pris en compte dans les calculs des combustibles de type 2 et 3.

Les produits de fission dont la formation a été prise en compte dans les calculs.

TABLEAU 6

Rendements de fission*, à la fin d'irradiation, des produits de fission de combustible de type 1.

Les rendements sont donnés séparément pour la fission de PU-239 et de U-235.

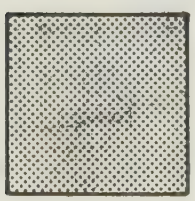
← Période du nuclide.

← Rendement provenant de la fission de PU-239

← Rendement provenant de la fission de U-235.

Nuclide stable

Nuclide non stable

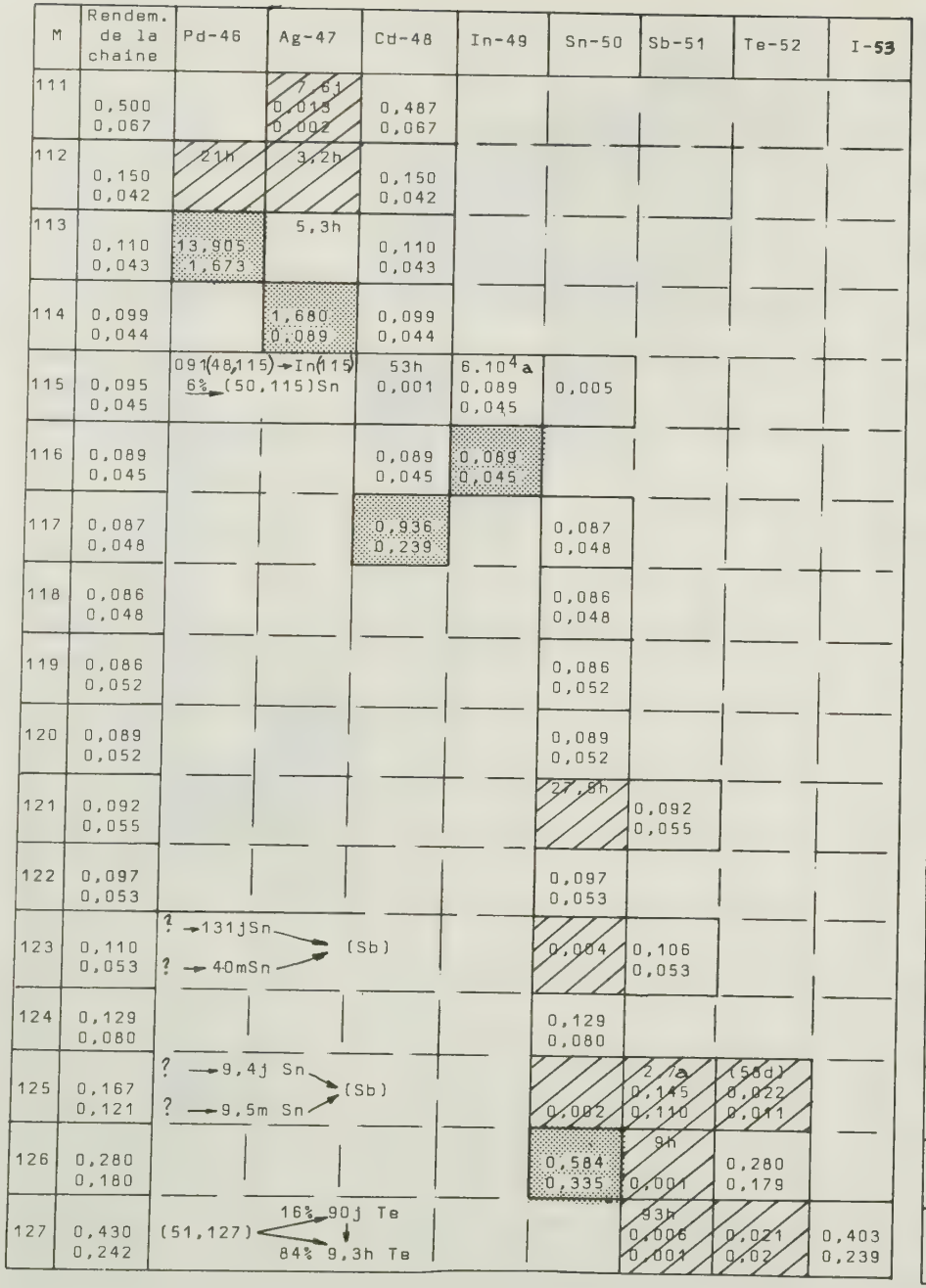


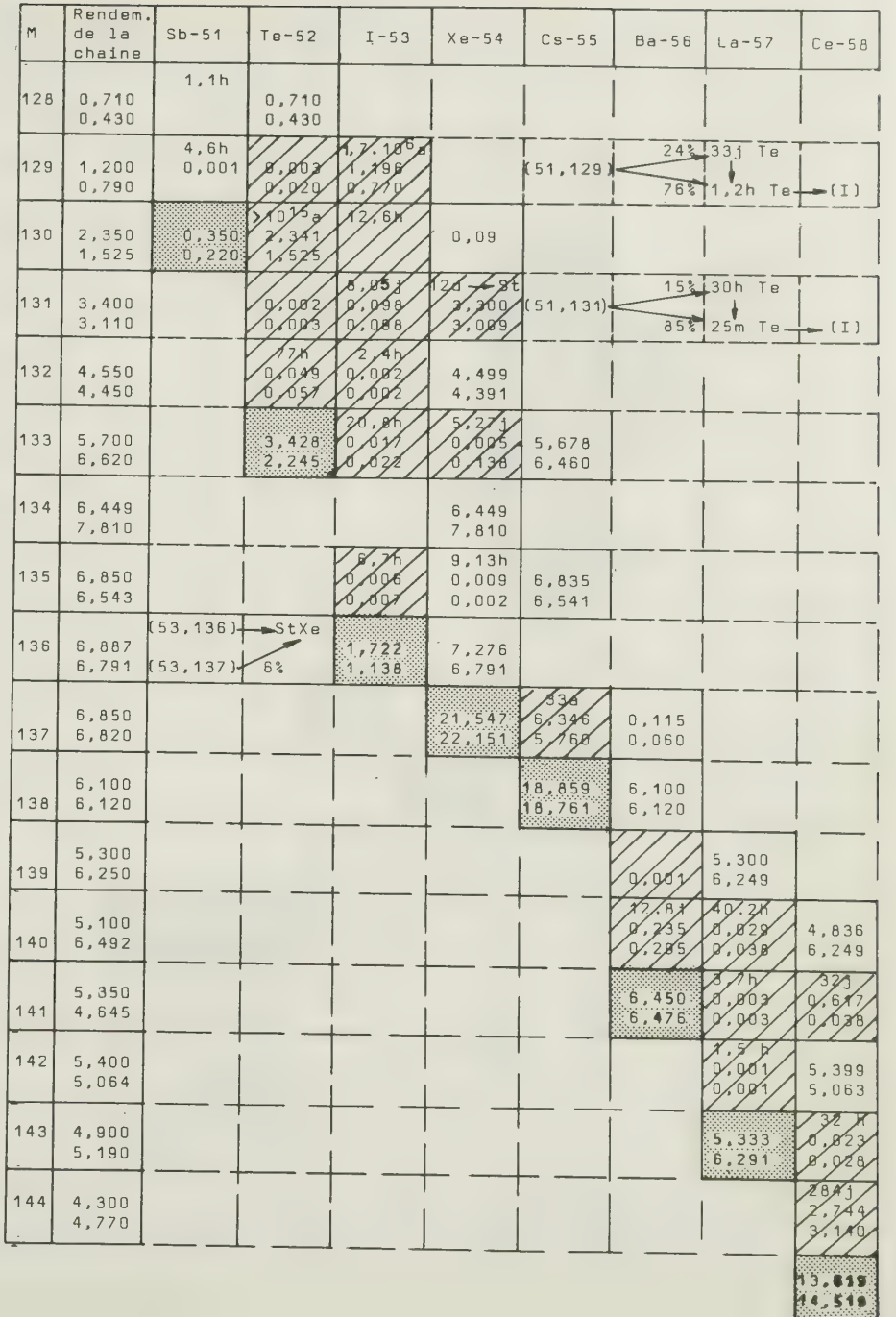
Rendement de l'élément.

(*) Contribution du nuclide (ou de l'élément) considéré aux 200 atomes formés par 100 fissions.

| M | Rend. de la chaine | 34 Se | 35 Br | 36 Kr | 37 Rb | 38 Sr | 39 Y | 40 Zr |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 77 | 0,019 | 0,016 | | | | | | |
| 78 | 0,039 | 0,039 | | | | | | |
| 79 | 0,070 | 6,5.10$^4$ a. 0,070 | | | | | | |
| 80 | 0,110<br>0,075 | 0,110<br>0,075 | | | | | | |
| 81 | 0,178 | | 0,178 | | | | | |
| 82 | 0,260<br>0,250 | 0,259<br>0,250 | 35,6h | 0,001 | | | | |
| 83 | 0,380<br>0,382 | 0,494<br>0,396 | 2,4h<br>0,001 | 0,379<br>0,382 | | | | |
| 84 | 0,520<br>0,625 | | 0,179 | 0,520<br>0,625 | | | | |
| 85 | 0,690<br>1,142 | (35,85) → 4,36Kr (20%) / → 10,2aKr | | 0,134<br>0,258 | 0,556<br>0,884 | | | |
| 86 | 0,900<br>1,644 | → St.Kr (2%) | | 0,919<br>1,644 | | | | |
| 87 | 1,150<br>3,774 | ($Br^{87}$) → 78mKr (98%) | | 0,001 | 1,131<br>2,889 | | | |
| 88 | 1,996<br>3,500 | $Br^{88}$ → $Kr^{88}$<br>$Br^{89}$ --> $Kr^{89}$ | | 2,77h<br>0,001<br>0,002 | 1,687<br>3,773 | 1,995<br>3,498 | | |
| 89 | 1,800<br>4,158 | | | 1,954<br>2,912 | | 50j<br>0,205<br>0,872 | 1,027<br>3,313 | |
| 90 | 2,120<br>4,420 | | | | | 2,8a<br>2,086<br>4,410 | 64,5h<br>0,002 | 0,034<br>0,008 |
| 91 | 2,600<br>5,310 | | | | | 9,7h<br>0,003 | 58j<br>0,540<br>1,162 | 2,057<br>4,128 |
| 92 | 3,150<br>5,300 | | | | | 2,7h | 3,6h<br>0,002 | 3,148<br>5,300 |
| 93 | 3,800<br>5,425 | | | | | 4,291<br>6,780 | 10h<br>0,005 | 10$^6$ a<br>3,800<br>5,425 |
| 94 | 4,600<br>5,700 | | | | | | 1,574<br>4,497 | 4,600<br>5,700 |

| M | Rendem. de la chaine | Zr-40 | Nb-41 | Mo-42 | Tc-43 | Ru-44 | Rh-45 | Pd-46 | Ag-47 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 95 | 5,300<br>6,770 | 65j<br>1,224<br>1,702 | 0,514<br>0,895 | 3,562<br>4,173 | | | | | |
| 96 | 5,250<br>6,750 | 5,242<br>6,750 | 23,4h | 0,008 | | | | | |
| 97 | 5,200<br>6,560 | 17h<br>0,019 | 72m<br>0,001 | 5,188<br>6,540 | | | | | |
| 98 | 5,500<br>6,240 | 20,112<br>29,032 | 0,514<br>0,696 | 5,500<br>6,240 | | | | | |
| 99 | 5,800<br>6,200 | | | 67h<br>0,058<br>0,068 | 2,210$^5$ a.<br>5,742<br>6,132 | | | | |
| 100 | 5,999<br>6,750 | | | 5,999<br>6,750 | 5,742<br>6,132 | | | | |
| 101 | 6,000<br>6,050 | | | 20,315<br>23,771 | | 6,000<br>6,050 | | | |
| 102 | 6,000<br>5,300 | | | | | 6,000<br>5,300 | | | |
| 103 | 5,850<br>4,000 | | | | | 41j<br>0,865<br>0,626 | 4,985<br>3,374 | | |
| 104 | 5,600<br>2,775 | | | | | 5,600<br>2,775 | | | |
| 105 | 5,300<br>1,026 | | | | | 4,5h<br>0,004 | 36,5h<br>0,028<br>0,006 | 5,268<br>1,020 | |
| 106 | 4,700<br>0,570 | | | | | 1a<br>3,286<br>0,339 | 5,013<br>3,300 | 1,414<br>0,131 | |
| 107 | 3,700<br>0,280 | | | | | 21,755<br>15,090 | | 6,5.10$^5$ a<br>3,700<br>0,280 | |
| 108 | 2,700<br>0,163 | | | | | | | 2,700<br>0,163 | |
| 109 | 1,670<br>0,087 | | | | | | | 13,6h<br>0,003 | 1,667<br>0,087 |
| 110 | 0,820 | | | | | | | 0,820 | |


M
Rendem. de la chaine
Pd-46
Ag-47
Cd-48
In-49
Sn-50
Sb-51
Te-52
I-53
111
0,500
0,067
7,6j
0,013
0,002
0,487
0,067
112
0,150
0,042
21h
3,2h
0,150
0,042
113
0,110
0,043
13,905
1,673
5,3h
0,110
0,043
114
0,099
0,044
1,680
0,089
0,099
0,044
115
0,095
0,045
091(48,115)→In(115)
6%→(50,115)Sn
53h
0,001
6.10⁴a
0,089
0,045
0,005
116
0,089
0,045
0,089
0,045
0,089
0,045
117
0,087
0,048
0,936
0,239
0,087
0,048
118
0,086
0,048
0,086
0,048
119
0,086
0,052
0,086
0,052
120
0,089
0,052
0,089
0,052
121
0,092
0,055
27,8h
0,092
0,055
122
0,097
0,053
0,097
0,053
123
0,110
0,053
? →131jSn
? →40mSn
(Sb)
0,004
0,106
0,053
124
0,129
0,080
0,129
0,080
125
0,167
0,121
? →9,4j Sn
? →9,5m Sn
(Sb)
0,002
2,7a
0,145
0,110
(58d)
0,022
0,011
126
0,280
0,180
0,584
0,335
9h
0,001
0,280
0,179
127
0,430
0,242
(51,127)
16%→90j Te
84%→9,3h Te
93h
0,006
0,001
0,021
0,02
0,403
0,239


M
Rendem. de la chaine
Sb-51
Te-52
I-53
Xe-54
Cs-55
Ba-56
La-57
Ce-58
128
0,710
0,430
1,1h
0,710
0,430
129
1,200
0,790
4,6h
0,001
8,003
0,020
1,7.10⁶a
1,196
0,770
(51,129)
24%→33j Te
76%→1,2h Te→(I)
130
2,350
1,525
0,350
0,220
>10¹⁵a
2,341
1,525
12,6h
0,09
131
3,400
3,110
0,002
0,003
8,05j
0,098
0,088
12d→Xt
3,300
3,009
(51,131)
15%→30h Te
85%→25m Te→(I)
132
4,550
4,450
77h
0,049
0,057
2,4h
0,002
0,002
4,499
4,391
133
5,700
6,620
3,428
2,245
20,8h
0,017
0,022
5,27j
0,005
0,138
5,678
6,460
134
6,449
7,810
6,449
7,810
135
6,850
6,543
6,7h
0,006
0,007
9,13h
0,009
0,002
6,835
6,541
136
6,887
6,791
(53,136)→StXe
(53,137)→6%
1,722
1,138
7,276
6,791
137
6,850
6,820
21,547
22,151
33h
6,346
5,760
0,115
0,060
138
6,100
6,120
18,859
18,761
6,100
6,120
139
5,300
6,250
0,001
5,300
6,249
140
5,100
6,492
12,8j
0,235
0,285
40,2h
0,029
0,038
4,836
6,249
141
5,350
4,645
6,450
6,476
8,7h
0,003
0,003
321j
0,617
0,038
142
5,400
5,064
1,5 h
0,001
0,001
5,399
5,063
143
4,900
5,190
5,333
6,291
32 h
0,823
0,028
144
4,300
4,770
284j
2,744
3,140
13,615
14,519

| M | Rendem. de la chaine | Pr-59 | Nd -60 | Pm-61 | Sm-62 | Eu-63 | Gd-44 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 141 | 5,350<br>4,645 | 4,730<br>4,603 | | | | | |
| 142 | 5,400<br>5,064 | | | | | | |
| 143 | 4,900<br>5,190 | 13,7 j<br>0,241<br>0,282 | 4,636<br>4,880 | | | | |
| 144 | 4,300<br>4,770 | | 15.10$^{15}$a<br>1,556<br>1,630 | | | | |
| 145 | 3,550<br>4,320 | 8h<br>0,003<br>0,003 | 3,547<br>4,316 | | | | |
| 146 | 2,850<br>3,870 | 4,974<br>4,888 | 2,850<br>3,870 | | | | |
| 147 | 2,250<br>2,875 | | 11,3j<br>0,092<br>0,145 | 2,6a<br>1,868<br>2,730 | 1,4.10$^{11}$a<br>0,290<br>0,365 | | |
| 148 | 1,750<br>2,280 | | 1,750<br>2,280 | | | | |
| 149 | 1,430<br>1,185 | | 2h<br>0,001 | 54h<br>0,012<br>0,010 | 1,418<br>1,174 | | |
| 150 | 1,150<br>0,735 | | 2,10$^{15}$a<br>1,136<br>0,735 | | 0,014 | | |
| 151 | 0,890<br>0,485 | | 15,567<br>17,957 | 27,5h<br>0,003<br>0,020 | 73a<br>0,887<br>0,468 | | |
| 152 | 0,700<br>0,282 | | | 1,883<br>2,742 | 0,700<br>0,282 | | |
| 153 | 0,480<br>0,142 | | | | 47 h<br>0,003<br>0,001 | 0,477<br>0,141 | |
| 154 | 0,359<br>0,067 | | | | 0,359<br>0,067 | | |
| 155 | 0,260<br>0,029 | | | | 3,671<br>2,352 | 1,7a<br>0,209<br>0,025 | 0,051<br>0,004 |
| 156 | 0,180<br>0,013 | | | | | 15,4j<br>0,010<br>0,001 | 0,170<br>0,012 |

| M | Rendem. de la chaine | Eu-63 | Gd-64 | Tb-65 |
|---|---|---|---|---|
| 157 | 0,120<br>0,007 | 15,4h | 0,120 | |
| 158 | 0,072 | 1 h | 0,072 | |
| 159 | 0,045 | 0,696<br>0,167 | 18 h | 0,045 |
| 160 | 0,025 | | 0,025 | 0,045 |
| 161 | 0,014 | | 0,438 | |

TABLEAU 7

| Z | Elément | d'origine Pu-239 | d'origine U-235 | Somme |
|---|---|---|---|---|
| 34 | Se | 109 | 149 | 258 |
| 35 | Br | 40 | 50 | 90 |
| 36 | Kr | 436 | 1.059 | 1.531 |
| 37 | Rb | 374 | 1.418 | 1.792 |
| 38 | Sr | 952 | 3.301 | 4.253 |
| 39 | Y | 349 | 1.684 | 2.033 |
| 40 | Zr | 4.465 | 10.916 | 15.381 |
| 41 | Nb | 114 | 337 | 451 |
| 42 | Mo | 4.509 | 8.938 | 13.447 |
| 43 | Tc | 1.274 | 2.305 | 3.579 |
| 44 | Ru | 4.830 | 5.674 | 10.504 |
| 45 | Rh | 1.113 | 1.271 | 2.384 |
| 46 | Pd | 3.086 | 629 | 3.715 |
| 47 | Ag | 373 | 33 | 406 |
| 48 | Cd | 208 | 90 | 298 |
| 49 | In | 20 | 17 | 37 |
| 50 | Sn | 129 | 126 | 255 |
| 51 | Sb | 77 | 84 | 161 |
| 52 | Te | 761 | 843 | 1.604 |
| 53 | I | 382 | 428 | 810 |
| 54 | Xe | 4.783 | 8.329 | 13.112 |
| 55 | Cs | 4.186 | 7.054 | 11.240 |
| 56 | Ba | 1.432 | 2.434 | 3.866 |
| 57 | La | 1.184 | 2.365 | 4.737 |
| 58 | Ce | 3.023 | 5.459 | 8.482 |
| 59 | Pr | 1.104 | 1.838 | 2.942 |
| 60 | Nd | 3.456 | 6.714 | 10.170 |
| 61 | Pm | 418 | 1.031 | 1.449 |
| 62 | Sm | 815 | 884 | 1.699 |
| 63 | Eu | 154 | 63 | 217 |
| 64 | Gd | 97 | 9 | 106 |
| TOTAL | | | | 121.009 |

Concentrations des produits de fission, dans le combustible de type 1 à 6% TCF, exprimées en ppm atomiques par rapport au nombre initial d'atomes d'uranium et de plutonium.

TABLEAU 8

| Z | Elément | Taux de combustion | | |
|---|---|---|---|---|
| | | 2% | 6% | 12% |
| 34 | Se | 76 | 222 | 459 |
| 35 | Br | 25 | 74 | 154 |
| 36 | Kr | 613 | 1.808 | 3.693 |
| 37 | Rb | 626 | 1.938 | 3.646 |
| 38 | Sr | 2.243 | 7.502 | 9.760 |
| 39 | Y | 817 | 2.736 | 3.148 |
| 40 | Zr | 5.252 | 15.208 | 31.386 |
| 41 | Nb | 227 | 313 | 325 |
| 42 | Mo | 5.000 | 15.950 | 33.874 |
| 43 | Tc | 1.153 | 3.450 | 7.177 |
| 44 | Ru | 3.171 | 8.670 | 17.224 |
| 45 | Rh | 542 | 2.003 | 4.392 |
| 46 | Pd | 1.072 | 3.385 | 7.493 |
| 47 | Ag | 108 | 316 | 654 |
| 48 | Cd | 70 | 209 | 430 |
| 49 | In | 7 | 21 | 44 |
| 50 | Sn | 100 | 288 | 536 |
| 51 | Sb | 33 | 90 | 170 |
| 52 | Te | 609 | 1.753 | 3.627 |
| 53 | I | 342 | 912 | 1.837 |
| 54 | Xe | 4.306 | 12.704 | 26.315 |
| 55 | Cs | 3.360 | 10.015 | 20.860 |
| 56 | Ba | 1.252 | 3.468 | 7.062 |
| 57 | La | 1.153 | 3.366 | 6.947 |
| 58 | Ce | 3.108 | 8.188 | 15.597 |
| 59 | Pr | 955 | 3.134 | 6.670 |
| 60 | Nd | 2.892 | 9.366 | 20.573 |
| 61 | Pm | 382 | 1.048 | 1.837 |
| 62 | Sm | 464 | 1.521 | 3.512 |
| 63 | Eu | 70 | 195 | 382 |
| 64 | Gd | 26 | 88 | 207 |
| 65 | Tb | 2 | 6 | 12 |
| 66 | Oy | - | 1 | 3 |
| Total | | 40.056 | 119.948 | 240.006 |

Concentrations des produits des fissions dans le combustible de type 2 à 2%, 6%, et 12% TCF exprimées en ppm atomiques par rapport au nombre initial d'atomes d'uranium et de plutonium.

TABLEAU 9

| Z | Elément | Taux de combustion 2% | 6% | 12% |
|---|---|---|---|---|
| 34 | Se | 51 | 150 | 300 |
| 35 | Br | 19 | 56 | 111 |
| 36 | Kr | 312 | 929 | 1.868 |
| 37 | Rb | 287 | 866 | 1.725 |
| 38 | Sr | 1.027 | 2.840 | 5.429 |
| 39 | Y | 510 | 1.215 | 2.088 |
| 40 | Zr | 4.319 | 12.706 | 24.835 |
| 41 | Nb | 211 | 473 | 518 |
| 42 | Mo | 5.144 | 15.469 | 32.193 |
| 43 | Tc | 1.155 | 3.569 | 7.154 |
| 44 | Ru | 4.670 | 12.817 | 24.066 |
| 45 | Rh | 612 | 2.696 | 5.978 |
| 46 | Pd | 2.206 | 7.027 | 14.835 |
| 47 | Ag | 253 | 754 | 1.505 |
| 48 | Cd | 125 | 383 | 766 |
| 49 | In | 11 | 36 | 74 |
| 50 | Sn | 830 | 381 | 758 |
| 51 | Sb | 43 | 119 | 222 |
| 52 | Tc | 719 | 2.077 | 4.088 |
| 53 | I | 475 | 1.249 | 2.385 |
| 54 | Xc | 4.319 | 13.038 | 26.044 |
| 55 | Cs | 3.443 | 10.596 | 21.209 |
| 56 | Ba | 1.423 | 3.911 | 7.571 |
| 57 | La | 1.186 | 3.513 | 6.967 |
| 58 | Ce | 3.000 | 8.287 | 15.385 |
| 59 | Pr | 798 | 2.840 | 5.978 |
| 60 | Nd | 2.618 | 8.530 | 18.022 |
| 61 | Pm | 371 | 1.138 | 2.099 |
| 62 | Sm | 640 | 2.033 | 4.275 |
| 63 | Eu | 127 | 362 | 686 |
| 64 | Gd | 55 | 188 | 411 |
| 65 | Tb | 6 | 18 | 35 |
| 66 | Dy | 1 | 4 | 8 |
| Total | | 40.266 | 120.270 | 239.593 |

Concentrations des produits de fission dans le combustible de type 3 à 2%, 6%, et 12% TCF, exprimées en ppm atomiques par rapport au nombre initial d'atomes d'uranium et de plutonium.

TABLEAU 10

| | Elément | Combustible de type 4 | Combustible de type 5 |
|---|---|---|---|
| 34 | Se | 466 | 624 |
| 36 | Kr | 2.047 | 3.060 |
| 37 | Rb | 1.222 | 1.828 |
| 38 | Sr | 4.374 | 6.352 |
| 39 | Y | 2.349 | 3.400 |
| 40 | Zr | 22.010 | 32.721 |
| 41 | Sb | 496 | 500 |
| 42 | Mo | 22.738 | 34.897 |
| 43 | Tc | 6.386 | 9.605 |
| 44 | Ru | 19.942 | 30.500 |
| 45 | Rh | 5.271 | 8.262 |
| 46 | Pd | 13.564 | 21.148 |
| 47 | Ag | 1.473 | 2.217 |
| 48 | Cd | 654 | 985 |
| 49 | In | 58 | 87 |
| 50 | Sn | 355 | 533 |
| 51 | Sb | 218 | 315 |
| 52 | Te | 3.465 | 5.217 |
| 53 | I | 1.730 | 2.577 |
| 54 | Xe | 23.338 | 35.025 |
| 55 | Cs | 20.368 | 30.546 |
| 56 | Ba | 6.773 | 10.050 |
| 57 | La | 6.097 | 9.130 |
| 58 | Ce | 11.367 | 16.205 |
| 59 | Pr | 5.069 | 7.761 |
| 60 | Nd | 14.626 | 22.708 |
| 61 | Pm | 1.823 | 2.520 |
| 62 | Sm | 3.073 | 4.885 |
| 63 | Eu | 572 | 830 |
| 64 | Gd | 274 | 441 |
| TOTAL | | 202.148 | 305.033 |

Concentrations des produits de fission dans le combustible de type 4, à 10, 1% TCF, et dans le combustible de type 5 à 15, 25% TCF exprimées en ppm atomiques par rapport au nombre initial d'atomes d'uranium et de plutonium.

TABLEAU 11

| | Elément | $\bar{V}$ |
|---|---|---|
| 34 | Se | 0 |
| 35 | Br | 0 |
| 36 | Kr | 0 |
| 37 | Rb | 0 |
| 38 | Sr | 2 |
| 39 | Y | 3 |
| 40 | Zr | 4 |
| 41 | Nb | 3 |
| 42 | Mo | 0 ou 4 |
| 43 | Tc | 0 |
| 44 | Ru | 0 |
| 45 | Rh | 0 |
| 46 | Pd | 0 |
| 47 | Ag | 0 |
| 48 | Cd | 0 |
| 49 | In | 0 |
| 50 | Sn | 0 |
| 51 | Sb | 0 |
| 52 | Te | 0 |
| 53 | I | 0 |
| 54 | Xe | 0 |
| 55 | Cs | 0 |
| 56 | Ba | 2 |
| 57 | La | 3 |
| 58 | Ce | 4 |
| 59 | Pr | 3 |
| 60 | Nd | 3 |
| 61 | Pm | 3 |
| 62 | Sm | 3 |
| 63 | Eu | 3 |
| 64 | Gd | 3 |

Valence ($\bar{V}$) de produits de fission dans un combustible à base d'oxydes mixtes d'uranium et de plutonium de rapport O/U+Pu = 2.00

TABLEAU 12

| Type de comb. | T% atom. TCF | Sans oxydation de molybdène | | Avec oxydation de molybdène | |
|---|---|---|---|---|---|
| | | $\bar{V}$ | $\Delta(o/U+Pu).10^{-3}$ | $\bar{V}$ | $\Delta(o/U+Pu).10^{-3}$ |
| I | 6 | 1,501 | 31,85 | 1,95 | 3,44 |
| II | 2 | 1,51 | 10,0 | 2,01 | 0 |
| | 6 | 1,49 | 33,2 | 2,02 | 0 |
| | 12 | 1,46 | 76,4 | 2,02 | 0 |
| III | 2 | 1,31 | 14,08 | 1,83 | 3,5 |
| | 6 | 1,305 | 43,6 | 1,82 | 11,9 |
| | 12 | 1,28 | 98,2 | 1,82 | 24,5 |
| IV | 10,1 | 1,27 | 82,0 | 1,72 | 31,5 |
| V | 15,05 | 1,25 | 135,0 | 1,71 | 52,2 |

Evolution de la stoechiometrie, $\Delta$(O/U+Pu), dans les cinq types de combustibles étudiés (voir tableau 2).

TABLEAU 13

| Type de combust | τ % TCF | 1 | 2 | 3 | 4 | | somme 4 | 5 | | somme 5 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | | | 1 | 2 | | 1 | 2 | |
| I | 8 | 12,1 | 11,44 | 1,81 | 27,79 | 1,33 | 29,12 | 6,71 | 39,02 | 45,73 |
| II | 2 | 12,28 | 10,80 | 1,772 | 27,31 | 1,36 | 28,67 | 8,72 | 37,75 | 46,47 |
| | 8 | 12,1 | 10,73 | 1,71 | 27,89 | 1,031 | 28,92 | 9,145 | 37,4 | 46,545 |
| | 12 | 12,50 | 10,97 | 1,766 | 29,23 | 0,9 | 30,12 | 7,001 | 37,61 | 44,61 |
| III | 2 | 11,5 | 10,44 | 1,86 | 34,24 | 1,92 | 35,26 | 6,085 | 33,85 | 39,93 |
| | 8 | 11,61 | 10,57 | 1,91 | 34,57 | 1,78 | 36,35 | 5,81 | 33,952 | 39,582 |
| | 12 | 11,65 | 10,57 | 1,88 | 35,16 | 1,60 | 36,76 | 5,43 | 33,72 | 39,15 |
| IV | 10,1 | 12,58 | 11,54 | 1,92 | 33,59 | 1,61 | 35,20 | 5,51 | 33,27 | 38,78 |
| V | 15,25 | 12,49 | 11,48 | 1,91 | 34,23 | 1,52 | 35,75 | 5,38 | 32,98 | 38,36 |

Concentration en pourcentage des principaux groupes de produits de fission :

-1 : Xe, Kr
-2 : Rb - I-Cs
-3 : Se - Br - Te
-4,1 : Mo - Tc - Ru - Rh - Pd
-4,2 : Ag - Cd - In - Sn -Sb
-5,1 : Ba - Sr
-5,2 : y - Zr - Nb - La - Ce - Pr - Nd - Pm - Sm - Eu - Gd.

TABLEAU 14

| Z | Elément | Forme chimique | Concent.* en mg/mole-g |
|---|---|---|---|
| 34 | Se | m | 20 |
| 35 | Br | " | 7 |
| 37 | Rb | H | 153 |
| 38 | Sr | " | 372 |
| 39 | Y | " | 181 |
| 40 | Zr | " | 1403 |
| 41 | Nb | m | 42 |
| 42 | Mo | " | 1290 |
| 43 | Re | " | 664 |
| 44 | Ru | " | 1062 |
| 45 | Rh | " | 243 |
| 46 | Pd | " | 395 |
| 47 | Ag | " | 44 |
| 48 | Cd | " | 33 |
| 49 | In | " | 4 |
| 50 | Sm | " | 30 |
| 51 | Sb | " | 20 |
| 52 | Te | " | 205 |
| 53 | I | " | 103 |
| 55 | Cs | H | 1495 |
| 56 | Ba | H | 531 |
| 57 | La | H | 658 |
| 58 | Ce | H | 1189 |
| 59 | Pr | H | 889 |
| 60 | Nd | H | 1467 |

Concentrations* des produits de fission dans la simulation, et leur forme chimique lors de l'élaboration m = métallique, H=hydrure.

* relative au poids d'une mole-g de combustible (UPu) $O_2$ initial.

TABLEAU 15

| N° de l'échantillon | Brut de fabrication (Å) | Après trait. oxyd. - red (Å) | Après trait. sous hydrogène purifié |
|---|---|---|---|
| 1 | 5,4577 | 5,4511 | |
| 2 | 5,4574 | 5,4511 | |
| 3 | 5,4588 | 5,4511 | |
| 4 | | | 5,4778 Å |
| témoin | | | 5,4820 Å |

Paramètres cristallins de trois échantillons de la simulation (6% atomique TCF) brut de fabrication et après traitement standard d'oxydo-réduction. Egalement sont donnés les paramètres d'un témoin $(U_{0,8}\ Pu_{0,2})\ O_{2-x}$ et un simulé ayant subi simultanément un traitement sous hydrogène purifié.

TABLEAU 16 : Poids en gr. de combustible $(U,Pu)O_2$ enrichi en U-235 donnant un débit de dose de 2,5 mr/h sur la paroi de l'enceinte.

Au point A

| Refroidisst. / Irrad. %TCF | 0 | 1 | 100 | 365 | 730 |
|---|---|---|---|---|---|
| 2% | 2,7 E-3 | 2,52 E-2 | 1,57 | 9,76 | 2,64 E+1 |
| 6% | 2,48E-3 | 2,5 E-2 | 1,19 | 5,2 | 1,26 E+1 |
| 12% | 2,48E-3 | 2,48 E-2 | 1,07 | 4,04 | 9,18 |

Au point B

| Refroidisst. / Irrad. %TCF | 0 | 1 | 100 | 365 | 730 |
|---|---|---|---|---|---|
| 2% | 9,22E-4 | 8,56 E-3 | 5,37 E-1 | 3,32 | 9 |
| 6% | 8,44E-4 | 8,47 E-3 | 4,07 E-1 | 1,77 | 4,3 |
| 12% | 8,44E-4 | 8,44 E-3 | 3,64 E-1 | 1,37 | 3,11 |

TABLEAU 17 : Poids en gr. de combustible $(U,Pu)O_2$ à base d'uranium naturel donnant un débit de dose de 2,5mt/h sur la paroi de l'enceinte.

Au point A

| Refr. / Irrad. % TCF | 0 | 1 | 100 | 365 | 730 |
|---|---|---|---|---|---|
| 2% | 8,17 E-4 | 6,87 E-3 | 7,54 E-1 | 6,91 | 1,35 E+1 |
| 6% | 7,7 E-4 | 6,31 E-3 | 4,51 E-1 | 2,66 | 7,1 |
| 12% | 7,31 E-4 | 6,25 E-3 | 3,48 E-1 | 1,66 | 4 |

Au point B

| Refr. / Irrad. % TCF | 0 | 1 | 100 | 365 | 730 |
|---|---|---|---|---|---|
| 2% | 2,72 E-4 | 2,34 E-3 | 2,56 E-1 | 2,32 | 6,31 |
| 6% | 2,62 E-4 | 2,16 E-3 | 1,53 E-1 | 9,06 E-1 | 2,42 |
| 12% | 2,49 E-4 | 2,22 E-3 | 1,17 E-1 | 5,68 E-1 | 1,36 |

TABLEAU 18

| | Isotope | Nb. d'atomes par $cm^3$ de combustible | % |
|---|---|---|---|
| Composition | U-235 | 1.076E22 | 44,99 |
| | U-236 | 5.520E19 | 0,23 |
| | U-238 | 6.930E21 | 28,975 |
| | Pu-239 | 5.480E21 | 22,92 |
| | Pu-240 | 5.960E20 | 2,50 |
| | Pu-241 | 7.320E19 | 0,31 |
| | Pu-242 | 4.260E18 | 0,002 |
| | Am-241 | 1.850E19 | 0,07 |
| Mode de Combustion | Energie moyenne des neutrons : 630 KeV.<br>Puissance spécifique moyenne : $1,27.10^{12}$ fis./ sec. gr(U+Pu).<br>Durée d'irradiation : 273 jours. | | |

Composition initiale et mode de combustion de l'échantillon étudié dans l'installation "VAMPIR".

TABLEAU 19

| Z | Element | Contribut. U-235 | Contribut. U-238 | Contribut. Plutonium | TOTAL | Concentr. en ppm Atomique |
|---|---|---|---|---|---|---|
| 34 | Se | 5.0512E 17 | 1.3114E 16 | 1.8070E 17 | 6.9894E 17 | 274 |
| 36 | Kr | 2.7268E 18 | 9.0247E 16 | 7.5953E 17 | 3.5765E 18 | 1.405 |
| 37 | Rb | 1.8626E 18 | 5.5946E 16 | 4.4865E 17 | 2.3672E 18 | 930 |
| 38 | Sr | 7.0430E 18 | 1.9561E 17 | 1.6189E 18 | 8.8575E 18 | 3.480 |
| 39 | Y | 3.6880E 18 | 1.2271E 17 | 8.5785E 17 | 4.6685E 18 | 1.834 |
| 40 | Zr | 2.1366E 19 | 8.1645E 17 | 8.3116E 18 | 3.0494E 19 | 11.980 |
| 41 | Nb | 7.0846E 17 | 2.8942E 16 | 3.2933E 17 | 1. 066E 18 | 418 |
| 42 | Mo | 1.5097E 19 | 6.4975E 17 | 8.1864E 18 | 2.3934E 19 | 9.403 |
| 43 | Tc | 4.1160E 18 | 2.0819E 17 | 2.3964E 18 | 6.7206E 18 | 2.640 |
| 44 | Ru | 8.9213E 18 | 6.6773E 17 | 9.1948E 18 | 1.8784E 19 | 7.380 |
| 45 | Rh | 1.8059E 18 | 1.4636E 17 | 1.8611E 18 | 3.8134E 18 | 1.498 |
| 46 | Pd | 1.4261E 18 | 1.9213E 17 | 5.4937E 18 | 7.1119E 18 | 2.794 |
| 47 | Ag | 7.9697E 16 | 8.4160E 15 | 6.5989E 17 | 7.4800E 17 | 294 |
| 48 | Cd | 1.2043E 17 | 1.0050E 16 | 3.1727E 17 | 4.4775E 17 | 1.759 |
| 49 | In | 1.6872E 16 | 1.0823E 15 | 3.0779E 16 | 4.8734E 16 | 20 |
| 50 | Sn | 1.8554E 17 | 6.9458E 15 | 1.9161E 17 | 3.8410E 17 | 151 |
| 51 | Sb | 1.8314E 17 | 4.4231E 15 | 1.1556E 17 | 3.0312E 17 | 120 |
| 52 | Te | 2.0469E 18 | 7.3119E 16 | 1.3563E 18 | 3.4764E 18 | 1.366 |
| 53 | I | 1.1532E 18 | 3.6058E 16 | 7.0295E 17 | 1.8922E 18 | 734 |
| 54 | Xe | 1.4830E 19 | 6.6392E 19 | 8.7592E 18 | 2.4253E 19 | 9.529 |
| 55 | Cs | 1.3042E 19 | 5.5455E 17 | 7.7627E 18 | 2.1359E 19 | 8.392 |
| 56 | Ba | 4.8930E 18 | 2.0643E 17 | 2.6645E 18 | 7.7639E 18 | 3.050 |
| 57 | La | 4.3061E 18 | 1.9482E 17 | 2.2644E 18 | 6.7653E 18 | 2.658 |
| 58 | Ce | 9.9974E 18 | 4.7616E 17 | 5.2110E 18 | 1.5685E 19 | 6.162 |
| 59 | Pr | 3.7956E 18 | 1.5513E 17 | 1.6931E 18 | 5.6438E 18 | 2.218 |
| 60 | Nd | 1.0471E 19 | 4.1228E 17 | 5.1383E 18 | 1.6022E 19 | 6.295 |
| 61 | Pm | 1.4076E 18 | 7.9626E 16 | 7.0805E 17 | 2.1957E 18 | 863 |
| 62 | Sm | 1.3562E 18 | 1.1616E 17 | 1.1118E 18 | 2.5841E 18 | 1.015 |
| 63 | Eu | 1.6941E 17 | 1.6950E 16 | 2.6591E 17 | 4.5227E 17 | 178 |
| 64 | Gd | 2.9319E 16 | 4.2704E 15 | 1.2356E 17 | 1.5715E 17 | 62 |

Concentration en produits de fission de l'échantillon étudié dans l'installation "VAMPIR", en fin d'irradiation. (Les concentrations sont données par rapport à un gramme de (U + Pu) initial).

TABLEAU 20

| No Atm, Z | Tps. de Rfr. / Element | Concentration en nombre d'atomes 1,98E07 sec. | 3,96E07 sec. | 5,94E07 sec. | Concentr. en ppm Atomique 5,94E07 sec. |
|---|---|---|---|---|---|
| 34 | Se | 6.9932E 17 | 6.9932E 17 | 6.9932E 17 | 274 |
| 36 | Kr | 3.5653E 18 | 3.5563E 18 | 3.5465E 18 | 1.393 |
| 37 | Rb | 2.3680E 18 | 2.3680E 18 | 2.3680E 18 | 930 |
| 38 | Sr | 7.7392E 18 | 7.5879E 18 | 7.5009E 18 | 2.947 |
| 39 | Y | 4.3381E 18 | 4.2721E 18 | 4.2633E 18 | 1.675 |
| 40 | Zr | 2.9899E 19 | 2.9776E 19 | 2.9758E 19 | 11.690 |
| 41 | Nb | 1.6341E 17 | 2.0328E 16 | 9.8459E 15 | 4 |
| 42 | Mo | 2.6611E 19 | 2.7169E 19 | 2.7246E 19 | 10.705 |
| 43 | Tc | 6.8263E 18 | 6.8263E 18 | 6.8263E 18 | 2.682 |
| 44 | Ru | 1.7104E 19 | 1.6640E 19 | 1.6365E 19 | 6.430 |
| 45 | Rh | 4.8009E 18 | 4.8421E 18 | 4.8469E 18 | 1.904 |
| 46 | Pd | 7.8398E 18 | 8.2731E 18 | 8.5426E 18 | 3.356 |
| 47 | Ag | 7.4354E 17 | 7.4354E 17 | 7.4354E 17 | 292 |
| 48 | Cd | 4.5455E 17 | 4.5455E 17 | 4.5455E 17 | 179 |
| 49 | In | 4.8208E 16 | 4.8208E 16 | 4.8208E 16 | 19 |
| 50 | Sn | 3.8133E 17 | 3.8051E 17 | 3.8028E 17 | 149 |
| 51 | Sb | 2.8009E 17 | 2.5837E 17 | 2.3892E 17 | 94 |
| 52 | Te | 3.3755E 18 | 3.3847E 18 | 3.4012E 18 | 1.336 |
| 53 | I | 1.8110E 18 | 1.8256E 18 | 1.8285E 18 | 718 |
| 54 | Xe | 2.4291E 19 | 2.4291E 19 | 2.4291E 19 | 9.544 |
| 55 | Cs | 2.1530E 19 | 2.1437E 19 | 2.1331E 19 | 8.381 |
| 56 | Ba | 7.3129E 18 | 7.3129E 18 | 7.3129E 18 | 2.873 |
| 57 | La | 6.7080E 18 | 6.7080E 18 | 6.7080E 18 | 2.635 |
| 58 | Ce | 1.3418E 19 | 1.2501E 19 | 1.2009E 19 | 4.718 |
| 59 | Pr | 6.2787E 18 | 6.3002E 18 | 6.3027E 18 | 2.476 |
| 60 | Nd | 1.8009E 19 | 1.8928E 19 | 1.9417E 19 | 7.629 |
| 61 | Pm | 1.9270E 18 | 1.6290E 18 | 1.3438E 18 | 528 |
| 62 | Sm | 2.9927E 18 | 3.2895E 18 | 3.5485E 18 | 1.394 |
| 63 | Eu | 4.1833E 17 | 3.9923E 17 | 3.8323E 17 | 151 |
| 64 | Gd | 1.9119E 17 | 2.1080E 17 | 2.2654E 17 | 89 |

Concentration en produits de fissions dans l'échantillon étudié dans l'installation "VAMPIR" pendant la période de refroidissement (les concentrations sont données par rapport à un gramme de (U + Pu) initial).

TABLEAU 21

| Nu-clide | Précurs. | Initial | Concentrations pendant l'irradiation | | | | | | Concentr. après 2 ans d'irradiat. |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | 50 jours | 100 jours | 150 jours | 200 jours | 250 jours | 273 jours | |
| UC | | 1.0760E 22 | 1.0621E 22 | 1.0484E 22 | 1.0349E 22 | 1.0215E 22 | 1.0084E 22 | 1.0022E 22 | 1.0022E 22 |
| UH | | 6.9300E 21 | 6.9149E 21 | 6.8999E 21 | 6.8849E 21 | 6.8699E 21 | 6.8550E 21 | 6.8480E 21 | 6.8480E 21 |
| UX | UC | 5.5200E 19 | 7.6899E 19 | 9.8235E 19 | 1.1921E 20 | 1.3984E 20 | 1.6011E 20 | 1.6947E 20 | 1.6947E 20 |
| US | UX UH PUU | 0.0 | 1.1678E 18 | 1.1797E 18 | 1.1846E 18 | 1.1894E 18 | 1.1941E 18 | 1.1963E 18 | 8.9416E 16 |
| NPS | US | 0.0 | 4.4283E 18 | 1.0019E 19 | 1.5622E 19 | 2.1230E 19 | 2.6842E 19 | 2.9512E 19 | 3.0708E 19 |
| NPH | NPS | 0.0 | 9.7273E 14 | 2.2997E 15 | 3.6303E 15 | 4.9621E 15 | 6.2950E 15 | 6.9282E 15 | 4.0518E 00 |
| PUH | NPH CMD | 0.0 | 1.5347E 16 | 6.7728E 16 | 1.5553E 17 | 2.7645E 17 | 4.2862E 17 | 5.1006E 17 | 8.1356E 17 |
| UN | UH | 0.0 | 4.6102E 15 | 4.6002E 15 | 4.5902E 15 | 4.5802E 16 | 4.5702E 15 | 4.5656E 15 | 2.5364E 00 |
| NPN | UN | 0.0 | 6.7840E 17 | 6.7692E 17 | 6.7545E 17 | 6.7398E 17 | 6.7252E 17 | 6.7183E 17 | 3.7318E 02 |
| PUN | NPN | 5.4800E 21 | 5.4080E 21 | 5.3395E 21 | 5.2711E 21 | 5.2036E 21 | 5.1372E 21 | 5.1064E 21 | 5.1071E 21 |
| PUZ | PUN | 5.9600E 20 | 5.9977E 20 | 6.0340E 20 | 6.0689E 20 | 6.1025E 20 | 6.1349E 20 | 6.1496E 20 | 6.1483E 20 |
| PUU | PUZ | 7.3200E 19 | 7.2834E 19 | 7.2486E 19 | 7.2157E 19 | 7.1844E 19 | 7.1548E 19 | 7.1415E 19 | 6.4356E 19 |
| AMU | PUU | 1.8500E 19 | 1.8866E 19 | 1.9227E 19 | 1.9583E 19 | 1.9933E 19 | 2.0278E 19 | 2.0438E 19 | 2.7421E 19 |
| AMDM | PMU | 0.0 | 3.4858E 16 | 6.5433E 16 | 9.2326E 16 | 1.1605E 17 | 1.3705E 17 | 1.4604E 17 | 1.4471E 17 |
| AMD | AMU | 0.0 | 2.1865E 15 | 2.2283E 15 | 2.2696E 15 | 2.3102E 15 | 2.3502E 15 | 2.3687E 15 | 1.7686E 00 |
| CMD | AMD | 0.0 | 8.3719E 16 | 1.5450E 17 | 2.1333E 17 | 2.6250E 17 | 3.0381E 17 | 3.2087E 17 | 1.4516E 16 |
| PUD | PUU AMD | 4.2600E 18 | 4.3996E 18 | 4.5390E 18 | 4.6776E 18 | 4.8157E 18 | 4.9532E 18 | 5.0173E 18 | 5.0176E 18 |
| AMT | AMD, AMDM, PUD | 0.0 | 1.2642E 16 | 2.7766E 16 | 4.5105E 16 | 6.4432E 16 | 8.5548E 16 | 9.5986E 16 | 9.5986E 16 |
| AMU | | 0.0 | 5.1867E 17 | 1.0305E 18 | 1.5358E 18 | 2.0346E 18 | | 2.7553E 18 | 9.7947E 18 |
| CMD | | 0.0 | 1.1822E 15 | 4.4861E 15 | 9.4748E 15 | 1.5795E 16 | | 2.6902E 16 | 1.2216E 15 |

CMD = Cu-242

UC = U-235
UX = U-236
US = U-237
UN = U-239
UH = U-238

NPS = Np-237
NPH = Np-238
NPN = Np-239

PUH = Pu-238
PUN = Pu-239
PUZ = Pu-240
PUU = Pu-241
PUD = Pu-242

AMU = Am-241
AMDM= Am-242
AMD = Am-242
AMT = Am-243

Evolution en cours d'irradiation et de refroidissement des atomes lourds dans l'échantillon étudié dans l'installation "VAMPIR" (les concentrations sont données en nombre d'atomes par rapport à 1cm3 du combustible initial).

TABLEAU 22

| TEMPS (sec) | PU 239 | PU 240 | PU 241 |
|---|---|---|---|
| 0.0 | 5.850E 20 | 6.363E 19 | 7.815E 18 |
| 7.9E-05 | 5.836E 20 | 6.372E 19 | 7.807E 18 |
| 1.6E-06 | 5.822E 20 | 6.380E 19 | 7.798E 18 |
| 2.4E-06 | 5.808E 20 | 6.389E 19 | 7.790E 18 |
| 2.1E-06 | 5.794E 20 | 6.397E 19 | 7.782E 18 |
| 3.9E-06 | 5.779E 20 | 6.406E 19 | 7.774E 18 |
| 4.7E-06 | 5.765E 20 | 6.414E 19 | 7.766E 18 |
| 5.5E-06 | 5.751E 20 | 6.423E 19 | 7.759E 18 |
| 6.3E-06 | 5.737E 20 | 6.431E 19 | 7.751E 18 |
| 7.1E-06 | 5.723E 20 | 6.440E 19 | 7.743E 18 |
| 7.9E-06 | 5.709E 20 | 6.448E 19 | 7.736E 18 |
| 8.6E-06 | 5.695E 20 | 6.456E 19 | 7.728E 18 |
| 9.4E-06 | 6.681E 20 | 6.465E 19 | 7.721E 18 |
| 1.0E-07 | 5.667E 20 | 6.473E 19 | 7.714E 18 |
| 1.1E-07 | 5.653E 20 | 6.481E 19 | 7.707E 18 |
| 1.2E-07 | 5.639E 20 | 6.489E 19 | 7.699E 18 |
| 1.3E-07 | 5.625E 20 | 6.497E 19 | 7.692E 18 |
| 1.35E-07 | 5.611E 20 | 6.506E 19 | 7.686E 18 |
| 1.4E-07 | 5.597E 20 | 6.514E 19 | 7.679E 18 |
| 1.5E-07 | 5.583E 20 | 6.522E 19 | 7.672E 18 |
| 1.6E-07 | 5.568E 20 | 6.530E 19 | 7.665E 18 |
| 1.7E-07 | 5.554E 20 | 6.538E 19 | 7.659E 18 |
| 1.75E-07 | 5.540E 30 | 6.546E 19 | 7.652E 18 |
| 1.8E-07 | 5.526E 20 | 6.554E 19 | 7.646E 18 |
| 1.9E-07 | 5.512E 20 | 6.561E 19 | 7.639E 18 |
| 2.0E-07 | 5.498E 20 | 6.569E 19 | 7.633E 18 |
| 2.05E-07 | 5.484E 20 | 6.577E 19 | 7.627E 18 |
| 2.1E-07 | 5.470E 20 | 6.585E 19 | 7.621E 18 |
| 2.2E-07 | 5.456E 20 | 6.593E 19 | 7.615E 18 |
| 2.3E-07 | 5.442E 20 | 6.600E 19 | 7.609E 18 |
| 2.4E-07 | 5.428E 20 | 6.608E 19 | 7.603E 18 |

Evolution en cours d'irradiation des isotopes de plutonium de l'échantillon étudié dans l'installation "VAMPIR". Le nombre d'atomes au début correspond à la concentration dans un gramme de $(U + PU)_{initial}$.

TABLEAU 23

| N° d'essay. | T°K | $\frac{10^4}{(T°K)}$ | t. exp. min. | Compt. x c/mn | fract. en % de l'activité | | | xx fc |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | | | PUZ+PUN | AMU | CMD | |
| 34 | 1903 | 5,255 | 5 | 2.707 | 85,8 | 13,0 | 1,2 | 2,120 |
| 35 | 1959 | 5,104 | 5 | 4.710 | | | | " |
| 36 | 1972 | 5,07 | 3 | 7.420 | 85,9 | 12,95 | 1,15 | " |
| 37 | 2005 | 4,988 | 5 | 10.070 | 85,75 | 13,08 | 1,14 | " |
| 39 | 2033 | 4,919 | 5 | 50.960 | 86,7 | 12,65 | 0,73 | " |
| 40 | 2075 | 4,819 | 5 | 80.270 | 86,6 | 12,3 | 1,1 | " |
| 41 | 2120 | 4,717 | 5 | 144.480 | 84,0 | 14,4 | 1,6 | " |
| 42 | 2160 | 4,629 | 5 | 217.382 | 83,0 | 15,4 | 1,6 | " |
| 43 | 2214 | 4,517 | 5 | 371.345 | 80,8 | 16,55 | 2,6 | " |
| 44 | 2241 | 4,462 | 5 | 535.491 | 72,5 | 24,8 | 2,6 | " |
| 45 | 2273 | 4,399 | 5 | 950.612 | 83,0 | 16,00 | 2,74 | " |
| 46 | 2323 | 4,296 | 5 | 1.122.800 | | | | " |
| 53 | 1783 | 5,609 | 10 | 1.855 | 70,4 | 27,04 | 2,56 | " |
| 54 | 1857 | 5,385 | 10 | 5.709 | 72,45 | 24,0 | 3,53 | " |
| 55 | 1943 | 5,146 | 10 | 26.831 | 71,1 | 24,5 | 4,40 | " |
| 59 | 1663 | 6,013 | 360 | 2.723 | 71,91 | 25,3 | 2,79 | 2,220 |
| 60 | 1713 | 5,838 | 150 | 6.764 | 73,6 | 22,9 | 3,49 | 2,230 |
| 61 | 1818 | 5,50 | 90 | 13.117 | 75,23 | 22,0 | 2,77 | " |
| 62 | 1867 | 5,356 | 50 | 17.836 | 76,75 | 20,25 | 3,07 | " |
| 63 | 1857 | 5,385 | 20 | 5.300 | 76,7 | 20,20 | 3,055 | 2,245 |
| 64 | 1889 | 5,294 | 20 | 10.200 | 77,2 | 19,6 | 3,22 | " |
| 65 | 1944 | 5,144 | 30 | 34.200 | 79,4 | 17,4 | 3,18 | " |
| 66 | 1957 | 5,110 | 30 | 57.500 | 77,9 | 18,95 | 3,19 | " |
| 67 | 1995 | 5,012 | 60 | 144.000 | 77,5 | 19,40 | 3,11 | 2,220 |
| 68 | " | 5,012 | 50 | 116.800 | 76,9 | 19,98 | 3,11 | " |
| 69 | " | 5,012 | 50 | 110.200 | 76,6 | 20,32 | 3,10 | " |
| 70 | " | 5,012 | 40 | 85.050 | | | | " |
| 71 | " | 5,012 | 30 | 62.000 | 77,0 | 20,0 | 3,0 | " |
| 72 | 2030 | 4,926 | 30 | 100.000 | 76,8 | 20,27 | 2,93 | " |
| 73 | 1997 | 5,007 | 30 | 60.415 | 78,2 | 18,75 | 3,05 | " |
| 74 | 2036 | 4,912 | 30 | 103.100 | 78,6 | 18,37 | 3,02 | " |
| 75 | 2059 | 4,857 | 20 | 108.500 | 78,94 | 18,02 | 3,03 | " |
| 76 | 2102 | 4,757 | 15 | 156.600 | 79,08 | 17,89 | 3,02 | " |
| 77 | 2160 | 4,63 | 10 | 200.000 | 79,33 | 17,66 | 3,01 | " |
| 78 | 2213 | 4,519 | 10 | 409.100 | 78,75 | 18,11 | 3,13 | " |
| 79 | 2289 | 4,369 | 6 | 659.000 | 78,5 | 18,79 | 2,70 | " |
| 80 | 2315 | 4,320 | 6 | 1.083.000 | 77,55 | 19,5 | 2,95 | " |

x - Brut de comptage

xx - Correction du rendement du compteur (correction sur $\pi$)

Données de comptages et spectrométrie alpha de dépôts d'évaporation (PUZ = Pu-240, PuN = Pu-239, AMU = Am-241, CMD = Cm-242).

TABLEAU 24

| N ros | $10^3$ / [T°K] | G (gr) | P ATM | LOG. P |
|---|---|---|---|---|
| 34 | 0.52549 | 0.7437E-06 | 0.1076E-06 | -6.9682 |
| 35 | 0.51046 | 0.1296E-05 | 0.1903E-06 | -6.7207 |
| 36 | 0.50710 | 0.3406E-05 | 0.5015E-06 | -6.2997 |
| 37 | 0.49875 | 0.2767E-05 | 0.4108E-06 | -6.3863 |
| 39 | 0.49188 | 0.1415E-04 | 0.2115E-05 | -5.6746 |
| 40 | 0.48193 | 0.2223E-04 | 0.3359E-05 | -5.4738 |
| 41 | 0.47170 | 0.3891E-04 | 0.5941E-05 | -5.2262 |
| 42 | 0.46296 | 0.5749E-04 | 0.8861E-05 | -5.0525 |
| 43 | 0.45167 | 0.9618E-05 | 0.1501E-04 | -4.8237 |
| 44 | 0.44623 | 0.1270E-04 | 0.1994E-04 | -4.7003 |
| 45 | 0.43995 | 0.2529E-04 | 0.3996E-04 | -4.3983 |
| 46 | 0.42955 | 0.2988E-04 | 0.4780E-04 | -4.3205 |
| 52 | 0.58548 | 0.6160E-07 | 0.8442E-08 | -8.0735 |
| 53 | 0.56085 | 0.2378E-06 | 0.3323E-07 | -7.4800 |
| 54 | 0.53850 | 0.6618E-06 | 0.9457E-07 | -7.0243 |
| 55 | 0.51467 | 0.3168E-05 | 0.4631E-06 | -6.3343 |
| 59 | 0.60132 | 0.9680E-08 | 0.1309E-08 | -8.8830 |
| 60 | 0.58377 | 0.5720E-07 | 0.7851E-08 | -8.1051 |
| 61 | 0.55005 | 0.4224E-06 | 0.5973E-07 | -7.2238 |
| 62 | 0.53562 | 0.4602E-06 | 0.6595E-07 | -7.1808 |
| 63 | 0.53850 | 0.3432E-06 | 0.4905E-07 | -7.3094 |
| 64 | 0.52938 | 0.6662E-06 | 0.9601E-07 | -7.0177 |
| 65 | 0.51440 | 0.1531E-05 | 0.2239E-06 | -6.6500 |
| 66 | 0.51099 | 0.2534E-05 | 0.3718E-06 | -6.4297 |
| 67 | 0.50125 | 0.3115E-05 | 0.4614E-06 | -6.3359 |
| 68 | 0.50125 | 0.3010E-05 | 0.4458E-06 | -6.3509 |
| 69 | 0.50125 | 0.2834E-05 | 0.4197E-06 | -6.3770 |
| 70 | 0.50125 | 0.2728E-05 | 0.4041E-06 | -6.3935 |
| 71 | 0.50125 | 0.2728E-05 | 0.4041E-06 | -6.3935 |
| 72 | 0.49261 | 0.4290E-05 | 0.6410E-06 | -6.1932 |
| 73 | 0.50075 | 0.2640E-05 | 0.3912E-06 | -6.4076 |
| 74 | 0.49116 | 0.4508E-05 | 0.6745E-06 | -6.1710 |
| 75 | 0.48567 | 0.7163E-05 | 0.1078E-05 | -5.9674 |
| 76 | 0.47574 | 0.1381E-05 | 0.2099E-05 | -5.6779 |
| 77 | 0.46296 | 0.2653E-05 | 0.4089E-05 | -5.3884 |
| 78 | 0.45188 | 0.5386E-05 | 0.8403E-05 | -5.0756 |
| 79 | 0.43687 | 0.1442E-04 | 0.2287E-04 | -4.6407 |
| 80 | 0.43197 | 0.2341E-04 | 0.3735E-04 | -4.4277 |

Données de tensions de vapeur de plutonium. G est le poids en gramme de $PuO_2$ déposé sur la cible (ramené à une heure d'exposition).

TABLEAU 25

| N ros | $10^3$ / [T°K] | G (gr) | P ATM | LOG. P |
|---|---|---|---|---|
| 34 | 0.52549 | 0.2360E-08 | 0.3395E-09 | - 9.4692 |
| 35 | 0.51046 | 0.4114E-08 | 0.6004E-09 | - 9.2215 |
| 36 | 0.50710 | 0.1139E-07 | 0.1545E-08 | - 8.8110 |
| 37 | 0.49875 | 0.8836E-08 | 0.1305E-08 | - 8.8845 |
| 39 | 0.49188 | 0.4319E-07 | 0.6432E-08 | - 8.1917 |
| 40 | 0.48193 | 0.6621E-07 | 0.9945E-08 | - 8.0024 |
| 41 | 0.47170 | 0.1395E-06 | 0.2118E-07 | - 7.6740 |
| 42 | 0.46296 | 0.2245E-06 | 0.3440E-07 | - 7.4634 |
| 43 | 0.45167 | 0.4121E-06 | 0.6394E-07 | - 7.1942 |
| 44 | 0.44643 | 0.8905E-06 | 0.1390E-06 | - 6.8570 |
| 45 | 0.43995 | 0.9562E-06 | 0.1503E-06 | - 6.8230 |
| 46 | 0.42955 | 0.1129E-05 | 0.1797E-06 | - 6.7455 |
| 52 | 0.58548 | 0.4860E-09 | 0.6623E-10 | -10.1790 |
| 53 | 0.56085 | 0.1730E-08 | 0.2409E-09 | - 9.6181 |
| 54 | 0.53850 | 0.4593E-08 | 0.6526E-09 | - 9.1853 |
| 55 | 0.51467 | 0.2190E-07 | 0.3181E-08 | - 8.5071 |
| 59 | 0.60132 | 0.6682E-10 | 0.8985E-11 | -11.0465 |
| 60 | 0.58377 | 0.3632E-09 | 0.4957E-10 | -10.3088 |
| 61 | 0.55005 | 0.2522E-08 | 0.3546E-09 | - 9.4503 |
| 62 | 0.53562 | 0.2593E-08 | 0.3609E-09 | - 9.4426 |
| 63 | 0.53850 | 0.1896E-08 | 0.2694E-09 | - 9.5696 |
| 64 | 0.52938 | 0.3534E-08 | 0.5065E-09 | - 9.2954 |
| 65 | 0.51440 | 0.7000E-08 | 0.1018E-08 | - 8.9924 |
| 66 | 0.51099 | 0.1357E-07 | 0.1960E-08 | - 8.7078 |
| 67 | 0.50125 | 0.1635E-07 | 0.2407E-08 | - 8.6184 |
| 68 | 0.50125 | 0.1636E-07 | 0.2410E-08 | - 8.6180 |
| 69 | 0.50125 | 0.1572E-07 | 0.2315E-08 | - 8.6354 |
| 70 | 0.50125 | 0.1160E-07 | 0.1708E-08 | - 8.7675 |
| 71 | 0.50125 | 0.1456E-07 | 0.2144E-08 | - 8.6687 |
| 72 | 0.49261 | 0.2375E-07 | 0.3528E-08 | - 8.4525 |
| 73 | 0.50075 | 0.1316E-07 | 0.1939E-08 | - 8.7123 |
| 74 | 0.49116 | 0.2205E-07 | 0.3281E-08 | - 8.4840 |
| 75 | 0.48567 | 0.3424E-07 | 0.5123E-08 | - 8.2905 |
| 76 | 0.47574 | 0.6535E-07 | 0.9879E-08 | - 8.0053 |
| 77 | 0.46296 | 0.1228E-06 | 0.1882E-07 | - 7.7255 |
| 78 | 0.45188 | 0.2591E-07 | 0.4020E-07 | - 7.3958 |
| 79 | 0.43687 | 0.7218E-07 | 0.1139E-06 | - 6.9436 |
| 80 | 0.43197 | 0.1231E-06 | 0.1953E-06 | - 6.7092 |

Données de tensions de vapeurs d'Américium. G est le poids en gr de $AmO_2$ qui est déposé sur la cible, (ramené à une heure d'exposition).

TABLEAU 26

| N°ros | $\frac{10^3}{[T°K]}$ | G(gr) | P ATM | LOG. P |
|---|---|---|---|---|
| 34 | 0.52549 | 0.2173E-09 | 0.3121E-10 | -10.5057 |
| 35 | 0.51046 | 0.3788E-09 | 0.5520E-10 | -10.2581 |
| 36 | 0.50710 | 0.9516E-09 | 0.1391E-09 | - 9.8566 |
| 37 | 0.49875 | 0.7679E-09 | 0.1132E-09 | - 9.9461 |
| 39 | 0.49188 | 0.2489E-08 | 0.3696E-09 | - 9.4323 |
| 40 | 0.48193 | 0.5915E-08 | 0.8871E-09 | - 9.0520 |
| 41 | 0.47170 | 0.1547E-07 | 0.2345E-08 | - 8.6299 |
| 42 | 0.46296 | 0.3025E-07 | 0.4630E-08 | - 8.3345 |
| 43 | 0.45167 | 0.6461E-07 | 0.1001E-07 | - 7.9996 |
| 44 | 0.44623 | 0.9317E-07 | 0.1452E-07 | - 7.8380 |
| 45 | 0.43995 | 0.1743E-06 | 0.2736E-07 | - 7.5629 |
| 46 | 0.42955 | 0.2028E-06 | 0.3222E-07 | - 7.4919 |
| 53 | 0.56085 | 0.1773E-09 | 0.2464E-10 | -10.6804 |
| 54 | 0.53850 | 0.6744E-09 | 0.9568E-10 | -10.0192 |
| 55 | 0.51467 | 0.3949E-08 | 0.5732E-09 | - 9.2417 |
| 59 | 0.60132 | 0.7348E-11 | 0.9866E-12 | -12.0059 |
| 60 | 0.58377 | 0.5511E-10 | 0.7510E-11 | -11.1244 |
| 61 | 0.55005 | 0.3220E-09 | 0.4521E-10 | -10.3448 |
| 62 | 0.53562 | 0.3839E-09 | 0.5462E-10 | -10.2627 |
| 63 | 0.53850 | 0.2858E-09 | 0.4055E-10 | -10.3920 |
| 64 | 0.52938 | 0.5796E-09 | 0.8294E-10 | -10.0812 |
| 65 | 0.51440 | 0.1279E-08 | 0.1856E-09 | - 9.7314 |
| 66 | 0.51099 | 0.2168E-08 | 0.3157E-09 | - 9.5007 |
| 67 | 0.50125 | 0.2609E-08 | 0.3836E-09 | - 9.4161 |
| 68 | 0.50125 | 0.2542E-08 | 0.3739E-09 | - 9.4273 |
| 69 | 0.50125 | 0.2388E-08 | 0.3512E-09 | - 9.4545 |
| 70 | 0.50125 | 0.2305E-08 | 0.3390E-09 | - 9.4698 |
| 71 | 0.50125 | 0.2204E-08 | 0.3242E-09 | - 9.4892 |
| 72 | 0.49261 | 0.3417E-08 | 0.5069E-09 | - 9.2951 |
| 73 | 0.50075 | 0.2140E-08 | 0.3149E-09 | - 9.5019 |
| 74 | 0.49116 | 0.3619E-08 | 0.5376E-09 | - 9.2695 |
| 75 | 0.48567 | 0.5741E-08 | 0.8577E-09 | - 9.0667 |
| 76 | 0.47574 | 0.1100E-07 | 0.1661E-08 | - 8.7796 |
| 77 | 0.46296 | 0.2162E-07 | 0.3308E-08 | - 8.4804 |
| 78 | 0.45188 | 0.4469E-07 | 0.6922E-08 | - 8.1597 |
| 79 | 0.43687 | 0.1034E-06 | 0.1629E-07 | - 7.7880 |
| 80 | 0.43197 | 0.1853E-06 | 0.2935E-07 | - 7.5324 |

Données de tensions de vapeurs de Curium. G est le poids de $CmO_2$, qui s'est déposé sur la cible,(ramené à une heure d'exposition.)

TABLEAU 27

| Elément mesuré | Isotopes (1) présents dans le combustible | Isotope analysé | Concentr. de l'isotope analysé (2) | Energie du rayonn. $\gamma$ analysé | Rendem. de comptage (3) | Rendem. de la raie (4) |
|---|---|---|---|---|---|---|
| Cs | 133,135,137 | 134 | $0,515.10^{-3}$ | 796 KeV | $2,64.10^{-3}$ | 1,00 |
| | | 137 | 0,32 | 662 KeV | $3,36.10^{-3}$ | 0,85 |
| Sb | 121,123,125,126 | 125 | 0,40 | 176 KeV | $4,5 .10^{-2}$ | 0,06 |
| | | | | 428 KeV | $8,4 .10^{-3}$ | 0,31 |
| Ce | 140,142,144 | 144 | $5,48.10^{-2}$ | 132 KeV | $6 .10^{-2}$ | 0,11 |
| Ru | 101 à 106 | 106 | $3,82.10^{-2}$ | 512 KeV | $8 .10^{-3}$ | 0,21 |
| Nb | 95 | 95 | 1,00 | 764 KeV | $2,7 .10^{-3}$ | 1,00 |

(1) Isotopes prédominants de l'élément dans le combustible
(2) Concentration atomique, au moment de la mesure, par rapport à l'élément considéré.
(3) Au contact avec le détecteur Ge/Li
(4) Voir références (68).

Données de calcul des tensions de vapeur des éléments dosés du fait de leur rayonnement gamma.

TABLEAU 28

| No. d'essag. | T°K | T. exp. min. | Integr. x max. 662KeV | Integr. xx max. 796KeV |
|---|---|---|---|---|
| 18 | 1373 | 60 | 84.464 | 17.900 |
| 19 | 1143 | 50 | 1.062 | 2.100 |
| 20 | 1073 | 60 | 20 | 60 |
| 21 | 1228 | 20 | 625 | 2.100 |
| 22 | 1303 | 10 | 2.185 | 5.000 |
| 23 | 1363 | 10 | 4.602 | 7.750 |
| 24 | 1435 | 5 | 18.341 | 34.800 |
| 25 | 1495 | 5 | 44.450 | 85.000 |
| 26 | 1533 | 5 | 38.430 | 70.300 |
| 27 | 1576 | 3 | 85.420 | 158.300 |
| 28 | 1608 | 1 | 140.000 | 475.000 |
| 29 | 1674 | 1,5 | 297.000 | 250.000 |
| 31 | 1795 | 1,5 | 198.250 | 52.000 |
| 32 | 1818 | 1 | 272.750 | 737.100 |
| 33 | 1881 | 1 | 242.500 | 610.000 |
| 34 | 1903 | 5 | 131.046 | 675.000 |
| 35 | 1959 | 5 | 82.958 | 228.000 |
| 36 | 1972 | 3 | 70.170 | 150.000 |

(x) Normalisé à 5 min. d'exposition et 10 min. de comptage en contact avec le détecteur Ge/Li

(xx) Normalisé à 5 min. exp. et 1000 min. de comptage.

Données de comptage de Cs-137 (Max. 662 KeV) et Cs-134 (max. 796 KeV) dans les dépots d'évaporation.

TABLEAU 29

| N^ros. | $\frac{10^3}{(T°K)}$ | G(gr) | P ATM | LOG. P |
|---|---|---|---|---|
| 18 | 0.72833 | 0.4905E-07 | 0.1025E-06 | -6.9892 |
| 19 | 0.87489 | 0.6167E-09 | 0.1176E-08 | -8.9295 |
| 20 | 0.93197 | 0.1161E-10 | 0.2146E-10 | -10.6683 |
| 21 | 0.81433 | 0.3484E-09 | 0.6888E-09 | -9.1619 |
| 22 | 0.76746 | 0.1269E-08 | 0.2584E-08 | -8.5878 |
| 23 | 0.73368 | 0.2672E-08 | 0.5566E-08 | -8.2545 |
| 24 | 0.69686 | 0.1065E-07 | 0.2276E-07 | -7.6428 |
| 25 | 0.66890 | 0.2207E-07 | 0.4813E-07 | -7.3176 |
| 26 | 0.65232 | 0.2439E-07 | 0.5387E-07 | -7.2687 |
| 27 | 0.63452 | 0.4961E-07 | 0.1111E-06 | -6.9543 |
| 28 | 0.62189 | 0.8130E-07 | 0.1839E-06 | -6.7354 |
| 29 | 0.59737 | 0.1726E-06 | 0.3983E-06 | -6.3998 |
| 31 | 0.55710 | 0.1151E-06 | 0.2752E-06 | -6.5604 |
| 32 | 0.55005 | 0.1584E-06 | 0.3810E-06 | -6.4191 |
| 33 | 0.53163 | 0.1408E-06 | 0.3445E-06 | -6.4628 |
| 34 | 0.52250 | 0.7610E-07 | 0.1886E-06 | -6.7244 |
| 35 | 0.51046 | 0.4818E-07 | 0.1203E-06 | -6.9198 |
| 36 | 0.5072 | 0.4075E-07 | 0.1032E-06 | -6.9865 |

Données des tensions de vapeur de Cs, calculé d'après l'activité du Cs-137. G, en gr, le poids de Cs, est normalisé à 5 min. d'exposition.

TABLEAU 30

| No. | $\frac{10^3}{(T°K)}$ | G | P (Atm) | Log. P |
|---|---|---|---|---|
| 18 | 0.72833 | 0.4590E-08 | 0.9594E-08 | -8.0180 |
| 19 | 0.87489 | 0.5385E-09 | 0.1027E-08 | -8.9885 |
| 20 | 0.93197 | 0.1538E-10 | 0.2843E-10 | -10.5463 |
| 21 | 0.81433 | 0.5385E-09 | 0.1064E-08 | -8.9729 |
| 22 | 0.76746 | 0.1282E-08 | 0.2611E-08 | -8.5833 |
| 23 | 0.73368 | 0.1923E-08 | 0.4005E-08 | -8.3974 |
| 24 | 0.69686 | 0.8923E-08 | 0.1907E-07 | -7.7197 |
| 25 | 0.66890 | 0.2179E-07 | 0.4754E-07 | -7.3230 |
| 26 | 0.65232 | 0.1803E-07 | 0.3981E-07 | -7.4000 |
| 27 | 0.63452 | 0.4059E-07 | 0.9090E-07 | -7.0414 |
| 28 | 0.62189 | 0.1218E-06 | 0.2755E-06 | -6.5599 |
| 29 | 0.59737 | 0.6410E-07 | 0.1479E-06 | -6.8299 |
| 31 | 0.55710 | 0.1333E-07 | 0.3187E-07 | -7.4967 |
| 32 | 0.55005 | 0.1890E-06 | 0.4545E-06 | -6.3424 |
| 33 | 0.53163 | 0.1564E-06 | 0.3827E-06 | -6.4172 |
| 34 | 0.52550 | 0.1731E-06 | 0.4290E-06 | -6.3675 |
| 35 | 0.51046 | 0.5846E-07 | 0.1460E-06 | -6.8358 |
| 36 | 0.5070 | 0.3846E-07 | 0.9737E-07 | -7.0116 |

Données des tensions de vapeur de Cs, calculées d'après l'activité du Cs-134. G en gramme, le poids de cesium est ramené à une exposition de 5 min.

TABLEAU 31

| Nbr. essay. | T°K | t exp. sec. | Integr.x Pic 176 KeV | Integr.x Pic 428 KeV |
|---|---|---|---|---|
| 19 | 1143 | 3000 | 168 | 93 |
| 21 | 1228 | 1200 | 180 | 98 |
| 22 | 1303 | 600 | 460 | 370 |
| 23 | 1363 | 600 | 1.735 | 960 |
| 24 | 1435 | 300 | 6.700 | 4.200 |
| 25 | 1495 | 300 | 12.000 | 6.200 |
| 26 | 1533 | 300 | 13.200 | 7.700 |
| 27 | 1576 | 180 | 10.125 | 7.050 |
| 28 | 1608 | 60 | 37.000 | 22.500 |
| 29 | 1674 | 90 | 62.000 | 47.250 |
| 32 | 1818 | 60 | 76.250 | 56.500 |
| 33 | 1881 | 60 | 84.250 | 54.300 |
| 34 | 1903 | 300 | 68.400 | 42.000 |
| 35 | 1959 | 300 | 44.760 | 23.480 |
| 36 | 1972 | 180 | 39.300 | 24.500 |

(x) données ramenées à 5 min. d'exposition et 10 min. de comptage.

Données de comptage d'Antimoin d'après la mesure de rayonnement gamma de l'isotope Sb-125.

TABLEAU 32

| No. | $\frac{10^3}{[T°K]}$ | G | P (Atm) | Log. P |
|---|---|---|---|---|
| 19 | 0.87489 | 0.6619E-11 | 0.1310E-10 | -10.8826 |
| 21 | 0.81433 | 0.7092E-11 | 0.1455E-10 | -10.8371 |
| 22 | 0.76746 | 0.1312E-10 | 0.3831E-10 | -10.4167 |
| 23 | 0.73368 | 0.6836E-10 | 0.1478E-09 | - 9.8304 |
| 24 | 0.69686 | 0.2640E-09 | 0.5856E-09 | - 9.2324 |
| 25 | 0.66890 | 0.4728E-09 | 0.1070E-09 | - 8.9704 |
| 26 | 0.65232 | 0.6204E-09 | 0.1193E-09 | - 8.9234 |
| 27 | 0.63452 | 0.3989E-09 | 0.9273E-09 | - 9.0328 |
| 28 | 0.62189 | 0.1458E-08 | 0.3423E-08 | - 8.4656 |
| 29 | 0.59737 | 0.2443E-08 | 0.5852E-08 | - 8.2327 |
| 32 | 0.55005 | 0.3004E-08 | 0.7501E-08 | - 8.1249 |
| 33 | 0.53163 | 0.3320E-08 | 0.8430E-08 | - 8.0742 |
| 34 | 0.52550 | 0.2695E-08 | 0.6934E-08 | - 8.1590 |
| 35 | 0.51046 | 0.1764E-08 | 0.4571E-08 | - 8.3400 |
| 36 | 0.5070 | 0.1548E-08 | 0.4069E-08 | - 8.3905 |

Données des tensions de vapeur d'antimoine mesurées d'après l'activité du Sb-125, par son emmission gamma de 176 KeV. G en grammes, est le poids de Sb ramené à 5 min. d'exposition.

TABLEAU 33

| No. | $\frac{10^3}{[T°K]}$ | G | P (Atm) | Log. P |
|---|---|---|---|---|
| 19 | 0.87489 | 0.3798E-11 | 0.7519E-11 | -11.1239 |
| 21 | 0.81433 | 0.4002E-11 | 0.8212E-11 | -11.0855 |
| 22 | 0.76746 | 0.1511E-10 | 0.3194E-10 | -10.4957 |
| 23 | 0.73368 | 0.3920E-10 | 0.8475E-10 | -10.0718 |
| 24 | 0.69686 | 0.1715E-09 | 0.3805E-09 | - 9.4197 |
| 25 | 0.66890 | 0.2532E-09 | 0.5733E-09 | - 9.2417 |
| 26 | 0.65232 | 0.3165E-09 | 0.7209E-09 | - 9.1421 |
| 27 | 0.63452 | 0.2879E-09 | 0.6693E-09 | - 9.1744 |
| 28 | 0.62189 | 0.9189E-09 | 0.2158E-08 | - 8.8660 |
| 29 | 0.59737 | 0.1930E-09 | 0.4623E-08 | - 8.3351 |
| 32 | 0.55005 | 0.2307E-08 | 0.5761E-08 | - 8.2395 |
| 33 | 0.53163 | 0.22188-08 | 0.5632E-08 | - 8.2494 |
| 34 | 0.52550 | 0.1715E-08 | 0.4413E-08 | - 8.3552 |
| 35 | 0.51046 | 0.9589E-09 | 0.2485E-08 | - 8.6046 |
| 36 | 0.5070 | 0.1001E-08 | 0.2629E-08 | - 8.5802 |

Données des tensions de vapeur d'antimoine mesurées d'après l'activité du Sb-125 par son émmission gamma de 428 KeV.
G, en grammes est le poids de Sb ramené à 5 min. d'exposition.

## TABLEAU 34

| N°os | T°K | $\frac{10^3}{[T°K]}$ | Comptage[x] | G (gr) | P ATM | LOG. P |
|---|---|---|---|---|---|---|
| 33 | 1881 | 0.53163 | 153.000 | 0.7338E-07 | 0.1583E-07 | -7.8005 |
| 34 | 1903 | 0.52549 | 186.000 | 0.8954E-07 | 0.1943E-07 | -7.7115 |
| 35 | 1959 | 0.51046 | 272.000 | 0.1308E-07 | 0.2879E-07 | -7.5408 |
| 36 | 1972 | 0.50710 | 510.000 | 0.2446E-07 | 0.5403E-07 | -7.2673 |
| 37 | 2005 | 0.49875 | 413.000 | 0.1981E-07 | 0.4412E-07 | -7.3554 |
| 39 | 2033 | 0.49188 | 1.188.000 | 0.5698E-07 | 0.1278E-06 | -6.8935 |
| 40 | 2075 | 0.48193 | 1.020.000 | 0.4892E-07 | 0.1109E-06 | -6.9553 |
| 41 | 2120 | 0.47170 | 2.100.000 | 0.1007E-06 | 0.2307E-06 | -6.6370 |
| 42 | 2160 | 0.46296 | 2.640.000 | 0.1266E-06 | 0.2927E-06 | -6.5335 |
| 43 | 2214 | 0.45177 | 4.160.000 | 0.1995E-06 | 0.4670E-06 | -6.3307 |
| 45 | 2273 | 0.43995 | 8.200.000 | 0.3933E-06 | 0.9327E-06 | -6.0303 |
| 46 | 2323 | 0.42955 | 10.800.000 | 0.5180E-07 | 0.1243E-05 | -5.9055 |
| 48 | 1393 | 0.71788 | 40 | 0.1918E-11 | 0.3562E-11 | -11.4483 |
| 50 | 1517 | 0.65920 | 42 | 0.2014E-11 | 0.3903E-11 | -11.4086 |
| 51 | 1619 | 0.61767 | 2.800 | 0.1343E-09 | 0.2688E-09 | -9.5706 |
| 52 | 1708 | 0.58548 | 1.250 | 0.5995E-10 | 0.1232E-09 | -9.9092 |
| 53 | 1783 | 0.56085 | 4.300 | 0.2062E-09 | 0.4332E-09 | -9.3633 |
| 54 | 1857 | 0.53850 | 15.000 | 0.7194E-09 | 0.1542E-08 | -8.8119 |
| 55 | 1943 | 0.51467 | 80.000 | 0.3837E-08 | 0.8413E-08 | -8.0750 |
| 58 | 1535 | 0.65147 | 65 | 0.3118E-11 | 0.6076E-11 | -11.2164 |
| 59 | 1663 | 0.60132 | 200 | 0.9592E-11 | 0.1946E-10 | -10.7109 |
| 60 | 1713 | 0.58377 | 1.450 | 0.6954E-10 | 1432E-09 | -9.8441 |
| 61 | 1818 | 0.55005 | 7.000 | 0.3357E-09 | 0.7121E-09 | -9.1475 |
| 62 | 1867 | 0.53562 | 14.200 | 0.6811E-09 | 0.1464E-08 | -8.8345 |
| 63 | 1857 | 0.53850 | 13.000 | 0.6235E-09 | 0.1337E-08 | -8.8740 |
| 64 | 1889 | 0.52938 | 18.500 | 0.8873E-09 | 0.1918E-08 | -8.7171 |
| 65 | 1944 | 0.51440 | 51.000 | 0.2446E-08 | 0.5365E-08 | -8.2705 |
| 66 | 1957 | 0.51099 | 82.500 | 0.3957E-08 | 0.8707E-08 | -8.0601 |
| 67 | 1995 | 0.50125 | 105.583 | 0.5064E-08 | 0.1125E-07 | -7.9488 |
| 68 | " | 0.50125 | 101.000 | 0.4844E-08 | 0.1076E-07 | -7.9681 |
| 60 | " | 0.50125 | 89.600 | 0.4297E-08 | 0.9548E-08 | -8.0201 |
| 70 | " | 0.50125 | 87.500 | 0.4197E-08 | 0.9324E-08 | -8.0304 |
| 71 | " | 0.50125 | 79.500 | 0.3813E-08 | 0.8472E-08 | -8.0720 |
| 72 | 2030 | 0.49261 | 115.833 | 0.5556E-08 | 0.1245E-07 | -7.9048 |
| 73 | 1997 | 0.50075 | 86.700 | 0.4158E-08 | 0.9244E-08 | -8.0342 |
| 74 | 2036 | 0.49116 | 145.000 | 0.6954E-08 | 0.1561E-07 | -7.8066 |
| 75 | 2059 | 0.48567 | 222.750 | 0.1068E-07 | 0.2411E-07 | -7.6177 |
| 76 | 2102 | 0.47574 | 416.700 | 0.1999E-07 | 0.4558E-07 | -7.3412 |
| 77 | 2160 | 0.46296 | 775.000 | 0.3717E-07 | 0.8593E-07 | -7.0658 |
| 78 | 2213 | 0.45188 | 1.730.000 | 0.8297E-07 | 0.1942E-06 | -6.7118 |
| 79 | 2289 | 0.43690 | 5.750.000 | 0.2758E-06 | 0.6555E-06 | -6.1834 |
| 80 | 2315 | 0.43197 | 9.530.000 | 0.4571E-06 | 0.1094E-05 | -5.9610 |

(x) coups/10min en contact avec le détecteur Ge/Li et par 5 min d'exposition.

Données des tensions de vapeurs de cérium. G est le poids de $CeO_2$ en gramme, qui s'est déposé sur la cible pendant 5 min. d'exposition.

TABLEAU 35

| N ros | T | $10^3$ / [T°K] | t exp. sec. | Compt. x | G (gr) | P ATM | LOG. P |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 19 | 1143 | 0.8240 | 3000 | 1.450 | 0.4200E-09 | 0.9710E-10 | -10.0118 |
| 34 | 1904 | 0.52549 | 300 | 7.200 | 0.2091E-08 | 0.4825E-09 | -9.3165 |
| 36 | 1972 | 0.50710 | 180 | 31.680 | 0.9199E-08 | 0.2161E-08 | -8.6653 |
| 37 | 2005 | 0.49875 | 300 | 12.600 | 0.3659E-08 | 0.8667E-09 | -9.0621 |
| 41 | 2120 | 0.47170 | " | 64.224 | 0.1865E-07 | 0.4543E-08 | -8.3427 |
| 42 | 2160 | 0.46296 | " | 99.000 | 0.2875E-07 | 0.7068E-08 | -8.1507 |
| 43 | 2214 | 0.45167 | " | 200.760 | 0.5829E-07 | 0.1451E-07 | -7.8383 |
| 44 | 2241 | 0.44623 | " | 405.960 | 0.1179E-06 | 0.2952E-07 | -7.5299 |
| 45 | 2273 | 0.43995 | " | 636.480 | 0.1848E-06 | 0.4662E-07 | -7.3315 |
| 46 | 2328 | 0.42955 | " | 950.630 | 0.2760E-06 | 0.7046E-07 | -7.1521 |
| 52 | 1708 | 0.58548 | 900 | 300 | 0.8711E-10 | 0.1905E-10 | -10.7202 |
| 53 | 1783 | 0.56085 | 600 | 510 | 0.1481E-09 | 0.3308E-10 | -10.4804 |
| 54 | 1857 | 0.53850 | 600 | 789 | 0.2291E-09 | 0.5223E-10 | -10.2821 |
| 55 | 1943 | 0.51467 | " | 5.466 | 0.1587E-08 | 0.3701E-09 | -9.4317 |
| 60 | 1713 | 0.58377 | 9000 | 75 | 0.2178E-10 | 0.4768E-11 | -11.3216 |
| 61 | 1818 | 0.55005 | 5400 | 533 | 0.1548E-09 | 0.3491E-10 | -10.4570 |
| 62 | 1867 | 0.53562 | 3000 | 350 | 0.1016E-09 | 0.2323E-10 | -10.6339 |
| 63 | 1857 | 0.53850 | 1200 | 367 | 0.1066E-09 | 0.2429E-10 | -10.6145 |
| 64 | 1889 | 0.52938 | 1200 | 1.357 | 0.3940E-09 | 0.9060E-10 | -10.0429 |
| 65 | 1944 | 0.51440 | 1800 | 2.455 | 0.7128E-09 | 0.1663E-09 | -9.7792 |
| 66 | 1957 | 0.51099 | " | 3.925 | 0.1148E-08 | 0.2686E-09 | -9.5709 |
| 67 | 1995 | 0.50125 | 3600 | 920 | 0.2904E-09 | 0.6861E-10 | -10.1636 |
| 68 | " | 0.50125 | 3000 | 4.732 | 0.1374E-08 | 0.3247E-09 | -9.4885 |
| 69 | " | 0.50125 | " | 8.084 | 0.2347E-08 | 0.5447E-09 | -9.2560 |
| 70 | " | 0.50125 | 2400 | 4.605 | 0.1337E-08 | 0.3160E-09 | -9.5004 |
| 71 | " | 0.50125 | 1800 | 4.223 | 0.1226E-08 | 0.2898E-09 | -9.5380 |
| 72 | 2030 | 0.49261 | " | 5.133 | 0.1490E-08 | 0.3553E-09 | -9.4494 |
| 73 | 1997 | 0.50075 | " | 4.173 | 0.1212E-08 | 0.2865E-09 | -9.5429 |
| 74 | 2036 | 0.49116 | " | 7.826 | 0.2272E-08 | 0.5425E-09 | -9.2656 |
| 75 | 2059 | 0.48567 | 1200 | 13.840 | 0.4019E-08 | 0.9647E-09 | -9.0156 |
| 76 | 2102 | 0.47574 | 900 | 24.146 | 0.7011E-08 | 0.1701E-08 | -8.7694 |
| 77 | 2160 | 0.46296 | 600 | 58.890 | 0.1710E-07 | 0.4204E-08 | -8.3763 |
| 78 | 2213 | 0.45188 | " | 120.000 | 0.3484E-07 | 0.8672E-08 | -8.0619 |
| 79 | 2289 | 0.48802 | 360 | 472.000 | 0.1370E-06 | 0.3464E-07 | -7.4604 |

(X) Ramené à une heure d'exposition et 10 min. de comptage.

Données des tensions de vapeurs de Ruthenium.G est le poids en gr. de Ru qui s'est déposé sur la cible en une heure d'exposition.

TABLEAU 36

| N ros | T | $10^3$ / T°K | t. exp sec. | Compt.x norm. | G(gr) | P ATM | LOG. P |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 31 | 1795 | 0.55710 | 90 | | 0.6140E-12 | 0.1352E-12 | -12.8680 |
| 32 | 1818 | 0.55005 | 60 | 16.560 | 0.7050E-11 | 0.1563E-11 | -11.8601 |
| 33 | 1881 | 0.53163 | 60 | 23.170 | 0.9850E-11 | 0.2212E-11 | -11.6528 |
| 34 | 1903 | 0.52521 | 300 | 39.240 | 0.1671E-10 | 0.3795E-11 | -11.4214 |
| 35 | 1959 | 0.51046 | 300 | 64.774 | 0.2760E-10 | 0.6345E-11 | -11.1975 |
| 36 | 1972 | 0.50710 | 180 | 153.360 | 0.6525E-10 | 0.1505E-10 | -10.8218 |
| 37 | 2005 | 0.49875 | 300 | 111.338 | 0.4740E-10 | 0.1102E-10 | -10.9572 |
| 39 | 2033 | 0.49188 | 300 | 752.480 | 0.3205E-09 | 0.7500E-10 | -10.1244 |
| 40 | 2075 | 0.48193 | 300 | 283.890 | 0.1209E-10 | 0.2860E-10 | -10.5433 |
| 41 | 2120 | 0.47170 | 300 | 353.721 | 0.1505E-09 | 0.3603E-09 | -10.4431 |
| 42 | 2160 | 0.46296 | 300 | 422.940 | 0.1800E-09 | 0.4360E-10 | -10.3614 |
| 43 | 2214 | 0.45167 | 300 | 509.622 | 0.2165E-09 | 0.5300E-10 | -10.2751 |
| 44 | 2241 | 0.44643 | 300 | 572.940 | 0.2440E-09 | 0.6000E-10 | -10.2217 |
| 45 | 2273 | 0.43995 | 300 | 838.500 | 0.3565E-09 | 0.8840E-10 | -10.0531 |
| 46 | 2328 | 0.42955 | 300 | 831.235 | 0.3518E-09 | 0.8880E-10 | -10.0526 |
| 51 | 1619 | 0.61767 | 900 | 35 | 0.1489E-13 | 0.3108E-14 | -14.5062 |
| 54 | 1857 | 0.53850 | 600 | 382 | 0.1627E-12 | 0.3640E-13 | -13.4385 |
| 60 | 1713 | 0.58377 | 9000 | 40 | 0.1700E-13 | 0.3665E-14 | -13.8360 |
| 61 | 1818 | 0.55005 | 5400 | 520 | 0.2208E-12 | 0.4901E-13 | -13.3091 |
| 62 | 1867 | 0.53562 | 3000 | 1.312 | 0.5580E-12 | 0.1255E-11 | -12.9014 |
| 63 | 1857 | 0.53850 | 1200 | 545 | 0.2320E-12 | 0.5200E-13 | -13.2841 |
| 64 | 1889 | 0.52938 | 1210 | 2.120 | 0.9020E-12 | 0.2085E-12 | -12.6905 |
| 65 | 1944 | 0.51440 | 1800 | 6.410 | 0.2730E-11 | 0.6250E-12 | -12.2037 |
| 66 | 1957 | 0.51099 | 1800 | 13.541 | 0.5750E-11 | 0.1323E-11 | -11.8775 |
| 68 | 1995 | 0.50125 | 3000 | 12.720 | 0.5420E-11 | 0.1258E-11 | -11.9001 |
| 69 | 1995 | 0.50125 | 3000 | 10.997 | 0.4680E-11 | 0.1088E-11 | -11.9636 |
| 70 | 1995 | 0.50125 | 2400 | 10.300 | 0.4385E-11 | 0.1016E-11 | -11.9921 |
| 71 | 1995 | 0.50125 | 1800 | 7.990 | 0.3401E-11 | 0.7910E-12 | -12.1019 |
| 72 | 2030 | 0.49261 | 1800 | 43.280 | 0.1845E-10 | 0.4320E-11 | -11.3649 |
| 73 | 1997 | 0.50075 | 1800 | 12.240 | 0.5190E-11 | 0.1209E-11 | -11.9184 |
| 74 | 2036 | 0.49116 | 1800 | 19.767 | 0.8380E-11 | 0.1968E-11 | -11.7061 |
| 75 | 2059 | 0.48567 | 1200 | 28.670 | 0.1218E-10 | 0.2870E-11 | -11.5417 |
| 76 | 2102 | 0.47574 | 900 | 44.800 | 0.1906E-10 | 0.4550E-10 | -11.3423 |
| 77 | 2160 | 0.46296 | 600 | 78.436 | 0.3342E-10 | 0.8075E-11 | -11.0932 |
| 78 | 2213 | 0.45188 | 600 | 132.000 | 0.5620E-10 | 0.1374E-10 | -10.8619 |
| 79 | 2289 | 0.43690 | 360 | 290.800 | 0.1235E-09 | 0.3080E-10 | -10.5121 |
| 80 | 2315 | 0.43197 | 360 | 525.800 | 0.2219E-09 | 0.5600E-10 | -10.2516 |

(X) Ramené à 1 heure d'exposition et 10 min le comptage en contact avec le détecteur.

Données des tensions de vapeurs de Niobium)G est le poids de Nb qui s'est déposé sur la cible en une heure d'exposition.

TABLEAU 37

| Nuclide | Période | Max. energie de particules beta |
|---|---|---|
| Rb-86 | 19j | 1,78 MeV |
| Sr-89 | 50j | 1,46 " |
| y-91 | 58j | 1,545 " |
| Cs-137 | 30a | 1,176 " |
| y-90 | 64h | 2,27 " |
| Rh-106 | 30s | 3,54 " |
| Pr-144 | 17m | 2,99 " |

Nuclides radioréactifs des produits de fissions dans l'échantillon étudié, dont les particules beta ont une énergie qui dépasse 1 MeV.

TABLEAU 38

| | T° | t exp. sec. | Intens. après absor. c/m $10^{-2}$ | | Activ. en µc | Remarque |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | 800 mg/cm² | 351 mg/cm² | | |
| 31 | 1795 | 60 | 40,5 | 24,0 | 6,64 | |
| 32 | 1818 | " | 19,3 | 13,8 | 3,76 | |
| 33 | 1881 | " | 28,7 | 15,0 | 4,14 | |
| 34 | 1903 | 300 | 31,0 | 15,4 | 4,26 | |
| 35 | 1959 | " | | | 10,8 | étalonnée (x) |
| 36 | 1972 | 180 | 85,0 | 36,5 | 10,0 | |
| 37 | 2005 | 300 | 63,6 | 28,8 | 7,95 | |
| 39 | 2033 | " | 184,5 | 74,4 | 20,58 | |
| 40 | 2075 | " | 220,0 | 100,0 | 27,70 | |
| 41 | 2120 | " | 293,0 | 119,0 | 33,90 | |
| 42 | 2160 | " | | | | |
| 43 | 2214 | | | | 52,4 | étalonnée (x) |
| 44 | 2241 | " | 533,2 | 340,0 | 111,0 | |
| 45 | 2273 | " | | | | |
| 61 | 1828 | 5400 | 1,0 | 0,4 | 0,131 | |
| 62 | 1867 | 3000 | 2,4 | 1,1 | 0,314 | |
| 63 | 1857 | 1200 | 1,8 | 0,8 | 0,236 | |
| 64 | 1884 | " | 3,3 | 1,5 | 0,434 | |
| 65 | 1944 | 1800 | 7,5 | 3,3 | 0,98 | |
| 66 | 1957 | " | 12,0 | 5,5 | 1,57 | |
| 67 | 1995 | 3600 | 15,3 | 7,0 | 2,0 | |
| 68 | " | 3000 | 17,5 | 7,6 | 2,10 | étalonnée (x) |
| 69 | " | " | 14,4 | 6,5 | 1,88 | |
| 70 | " | 2400 | 10,5 | 5,8 | 1,37 | |
| 71 | " | 1800 | 11,5 | 5,4 | 1,51 | |
| 72 | 2030 | " | 17,7 | 2,0 | 2,32 | |
| 73 | 1997 | " | 13,7 | 6,2 | 1,79 | |
| 74 | 2036 | " | 22,0 | 10,0 | 2,98 | |
| 75 | 2059 | 1200 | 34,5 | 16,0 | 4,52 | |
| 76 | 2102 | 900 | 66,0 | 30,0 | 8,65 | |
| 77 | 2160 | 600 | 127,0 | 59,0 | 16,50 | |
| 78 | 2213 | " | 267,0 | 130,0 | 25,00 | |

(x) Etalonné par spectrometrie beta par le Laboratoire de metrologie de rayonnements ionosants à CEN-SACLAY.

Données des comptages beta des dépots de vaporisation utilisant des feuilles d'aluminium comme absorbeur. Le comptage (c/m) et l'activité (µc) sont normalisés pour 5 min. d'exposition et 1 min. de comptage.

TABLEAU 39

| No. | $\frac{10^3}{[T°K]}$ | G | P (Atm) | Log. P |
|---|---|---|---|---|
| 61 | 0.55005 | 0.1318E-08 | 0.3470E-08 | -8.4597 |
| 62 | 0.53562 | 0.3163E-08 | 0.8439E-08 | -8.0737 |
| 63 | 0.53850 | 0.2371E-08 | 0.6310E-08 | -8.2000 |
| 64 | 0.52938 | 0.4349E-08 | 0.1167E-07 | -7.9329 |
| 65 | 0.51440 | 0.9885E-08 | 0.2691E-07 | -7.5701 |
| 66 | 0.51099 | 0.1582E-07 | 0.4320E-07 | -7.3645 |
| 67 | 0.50125 | 0.2017E-07 | 0.5561E-07 | -7.2548 |
| 68 | 0.50125 | 0.2112E-07 | 0.5824E-07 | -7.2348 |
| 69 | 0.50125 | 0.1898E-07 | 0.5234E-07 | -7.2811 |
| 70 | 0.50125 | 0.1384E-07 | 0.3817E-07 | -7.4183 |
| 71 | 0.50125 | 0.1516E-07 | 0.4180E-07 | -7.3788 |
| 72 | 0.49261 | 0.2333E-07 | 0.6490E-07 | -7.1878 |
| 73 | 0.50075 | 0.1804E-07 | 0.4978E-07 | -7.3029 |
| 74 | 0.49116 | 0.2900E-07 | 0.8078E-07 | -7.0927 |
| 75 | 0.48567 | 0.4547E-07 | 0.1274E-06 | -6.8948 |
| 76 | 0.47574 | 0.8699E-07 | 0.2462E-06 | -6.6086 |
| 77 | 0.46296 | 0.1674E-06 | 0.4804E-06 | -6.3184 |
| 78 | 0.45188 | 0.3519E-06 | 0.1022E-05 | -5.9905 |

Données des tensions de vapeur de strontium.

G, en grammes, est le poids de SrO qui s'est déposé sur la cible pendant 5 min. d'exposition.

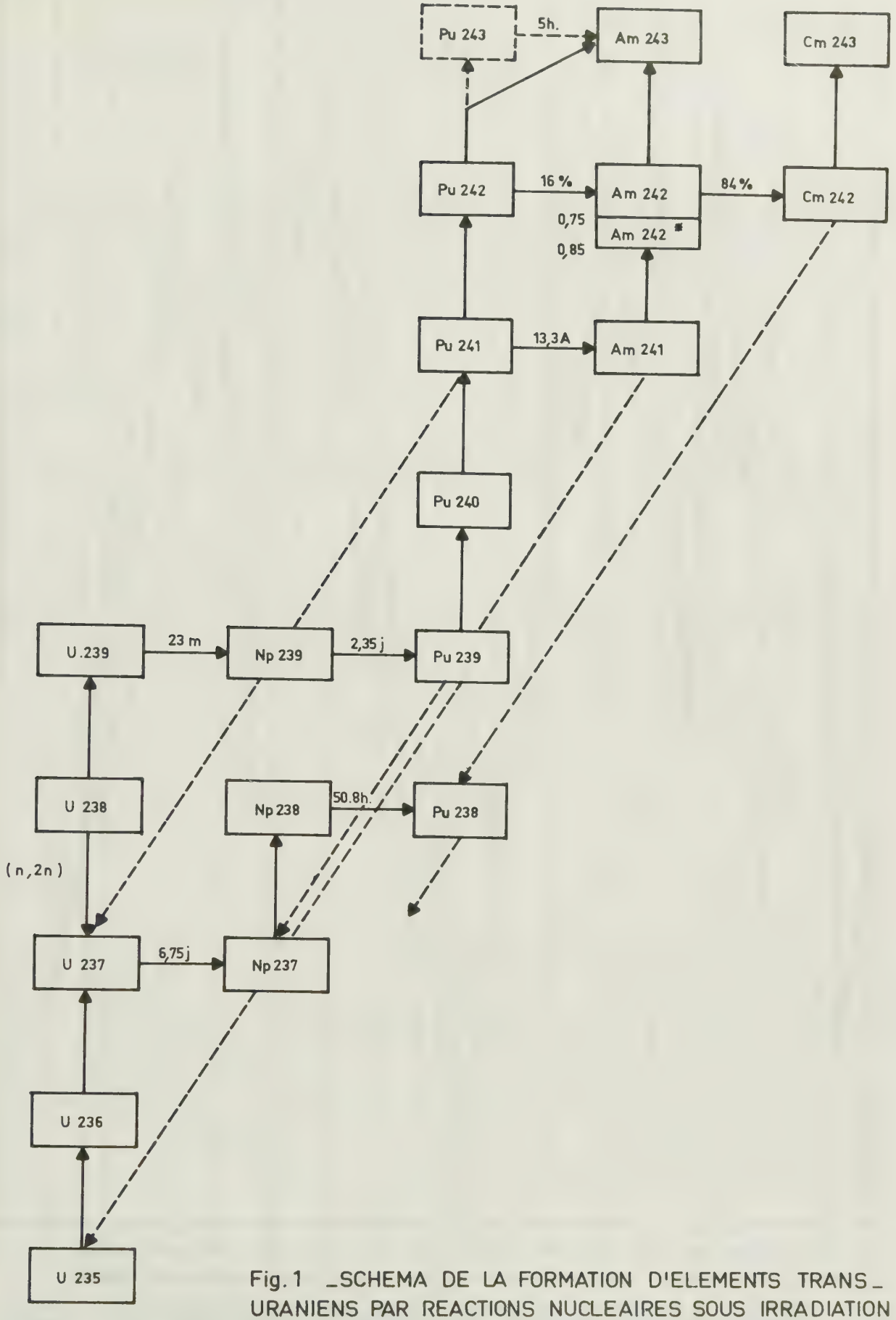



Fig. 1 _SCHEMA DE LA FORMATION D'ELEMENTS TRANS_ URANIENS PAR REACTIONS NUCLEAIRES SOUS IRRADIATION NEUTRONIQUE.

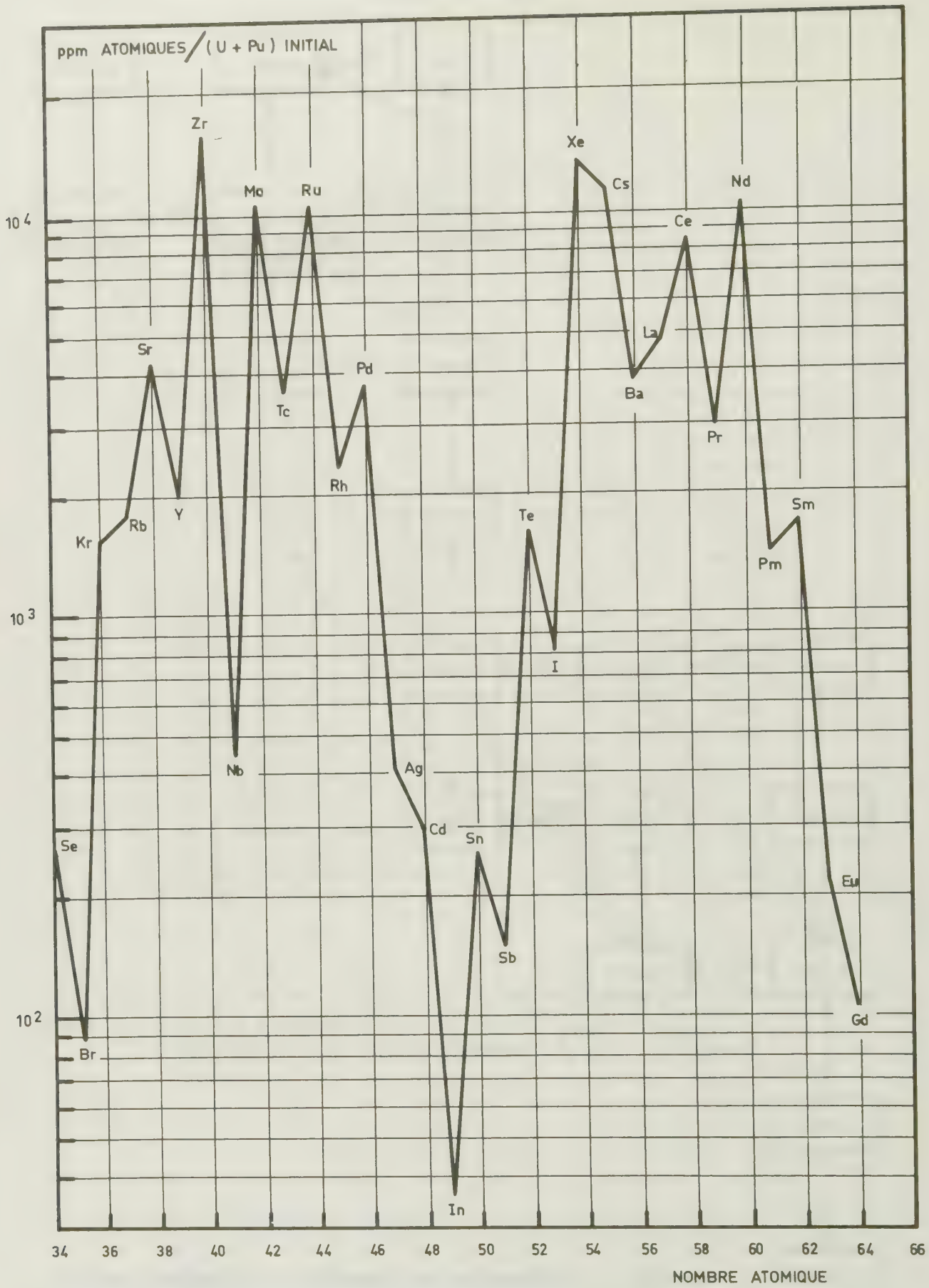



Fig.2 _ RÉPARTITION DES PRODUITS DE FISSION DU COMBUSTIBLE - 1 , APRÉS 6 % ATOMIQUE DE COMBUSTION .

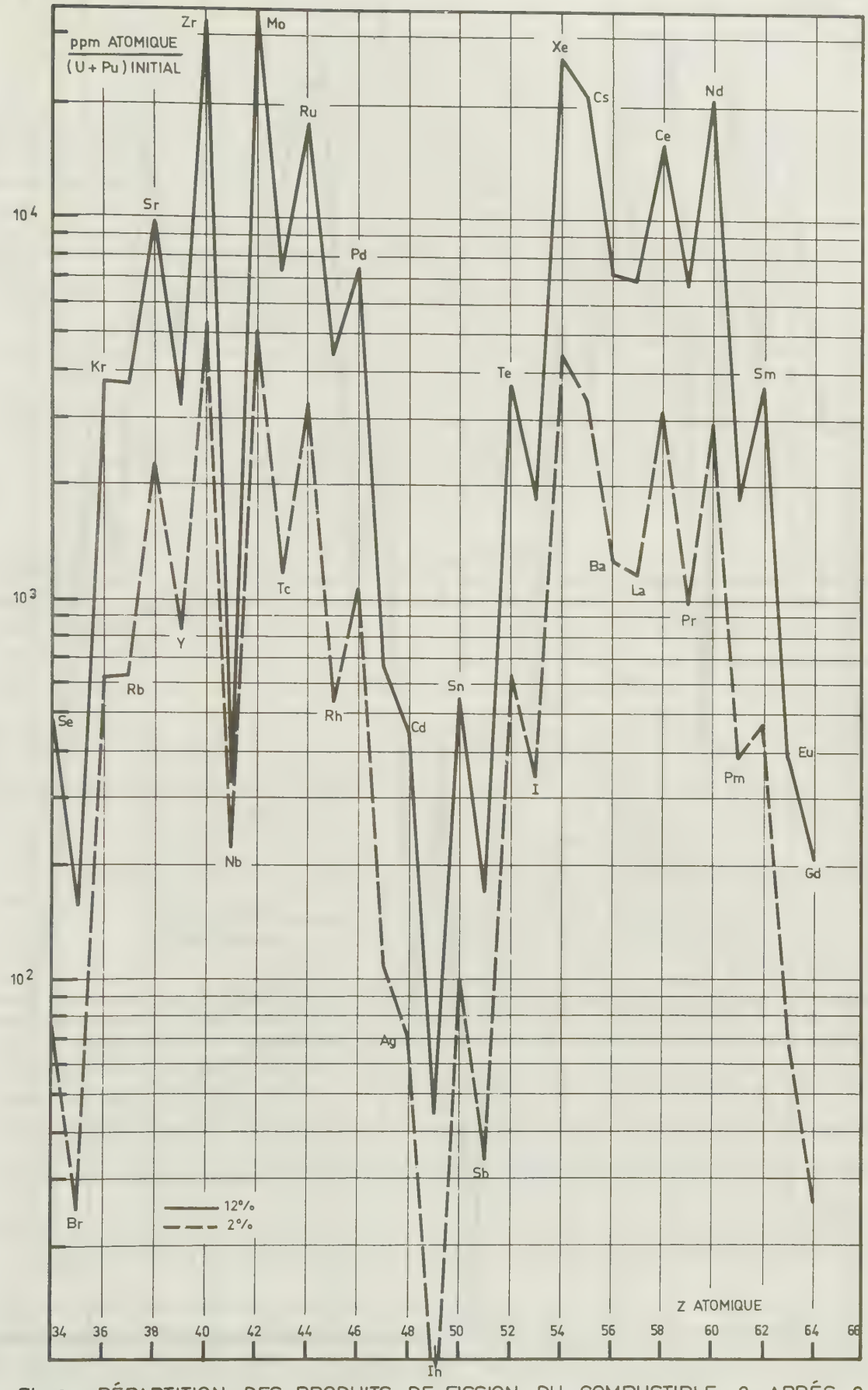



Fig. 3 – RÉPARTITION DES PRODUITS DE FISSION DU COMBUSTIBLE – 2 APRÉS 2% ET 12% ATOMIQUE DE COMBUSTION.

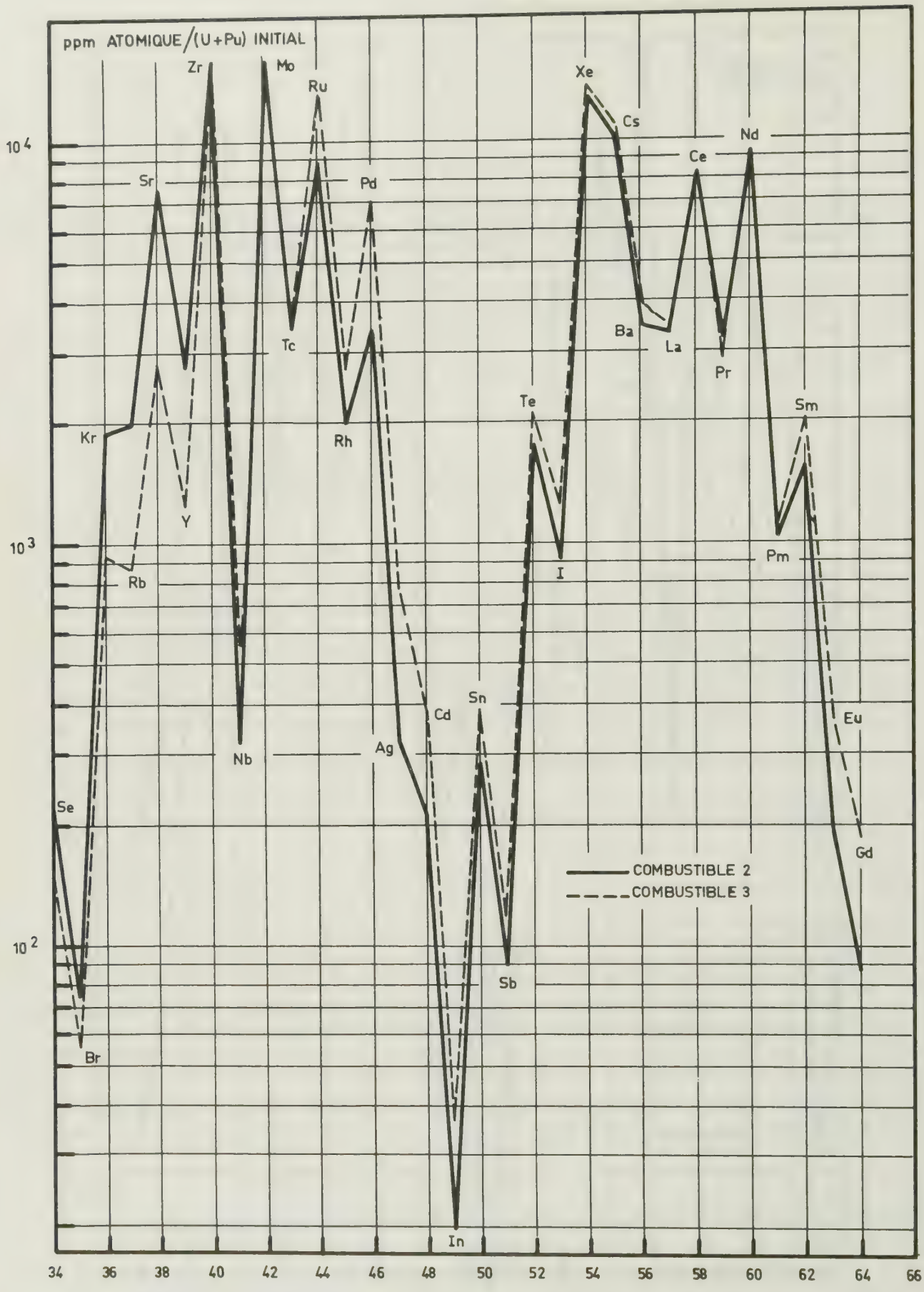



Fig. 4 _ RÉPARTITION DES PRODUITS DE FISSION DES COMBUSTIBLES 2 ET 3, A 6% ATOMIQUE DE COMBUSTION.

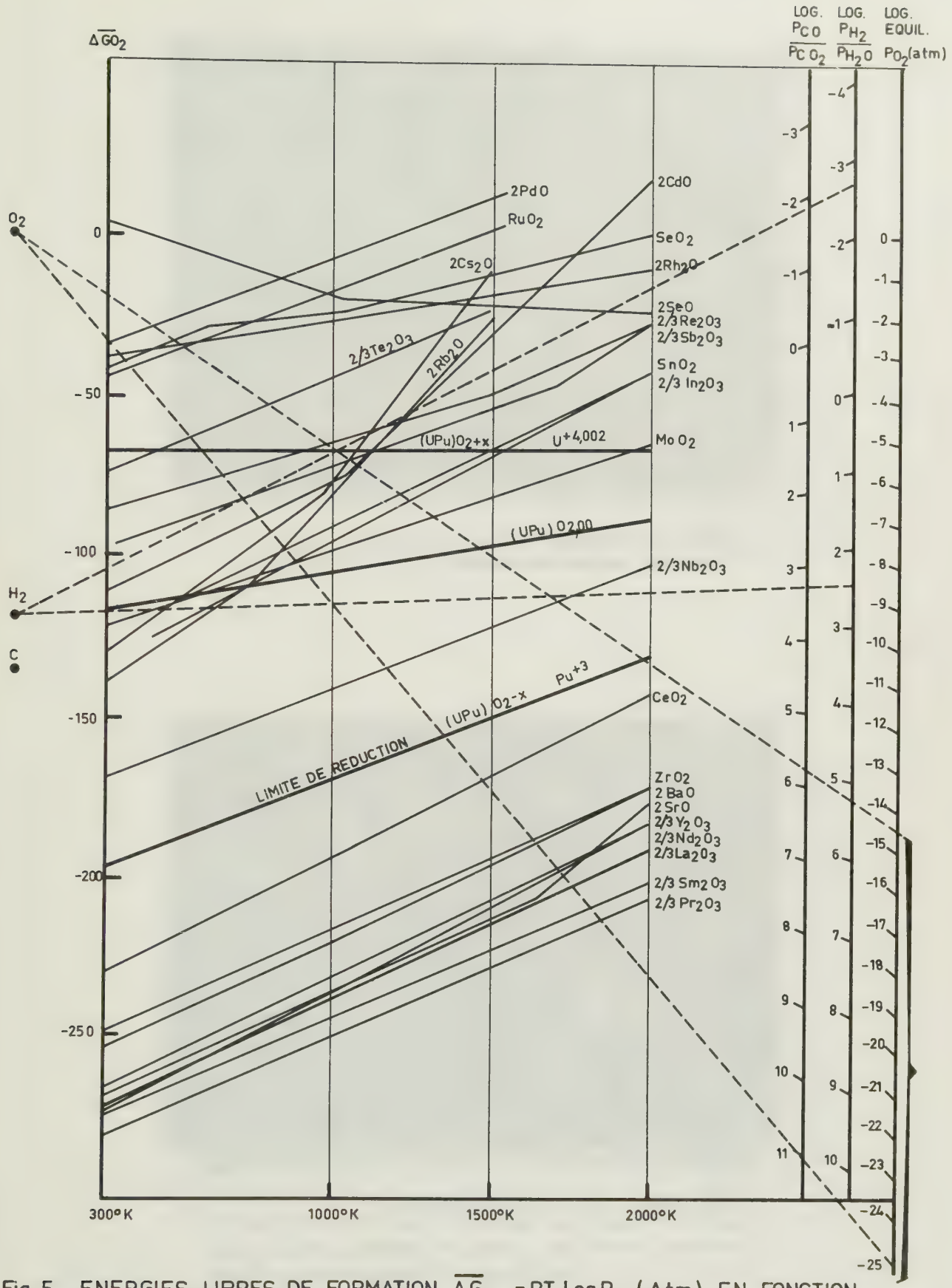
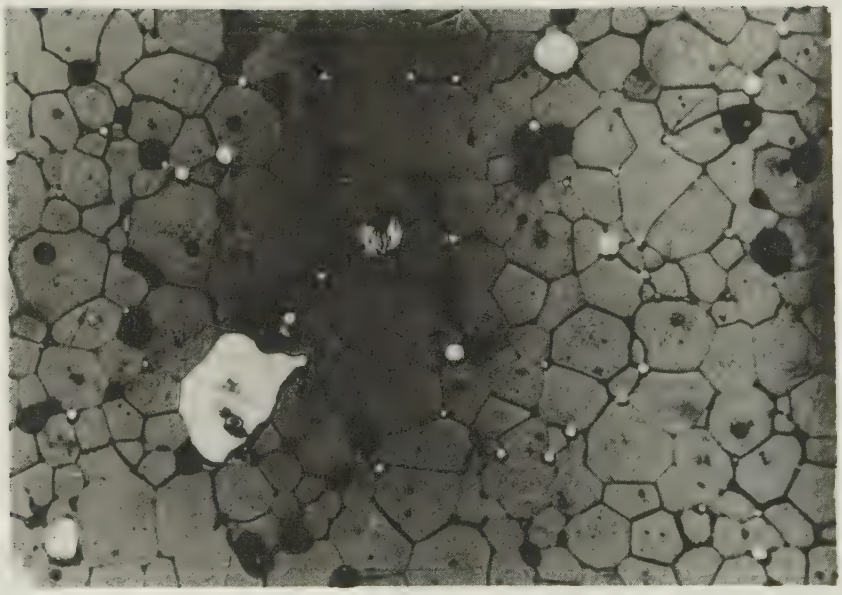



Fig. 5 _ENERGIES LIBRES DE FORMATION $\overline{\Delta G}_{O_2} = RT \log P_{O_2}$ (Atm) EN FONCTION DE LA TEMPERATURE DES OXYDES DE PRODUITS DE FISSION ET D'OXYDES MIXTES D'URANIUM ET DE PLUTONIUM.

355×1,5

6a - BRUT DE POLISSAGE ; LES TACHES BLANCHES SONT LES INCLUSIONS METALLIQUES.



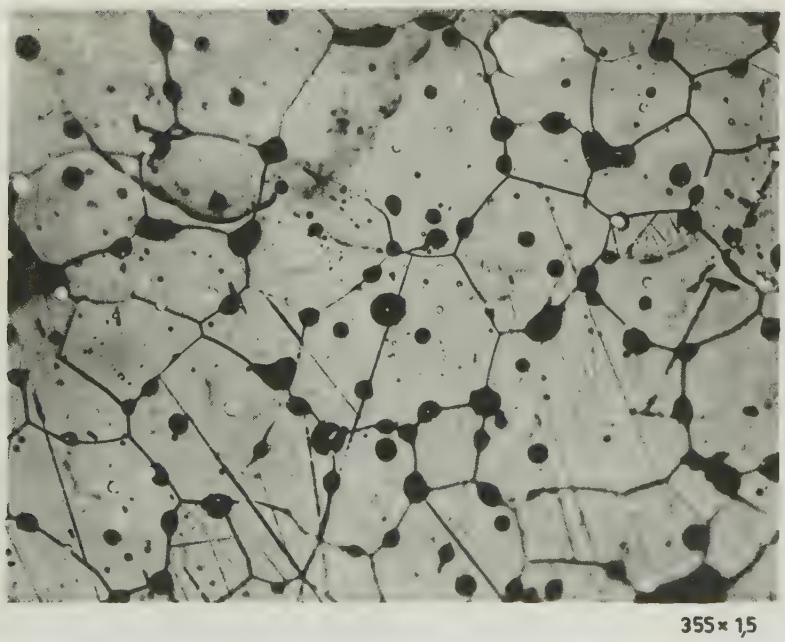
355×1,5

6b _ ASPECT APRES ATTAQUE CHIMIQUE.

Fig. 6 - ASPECT MICROGRAPHIQUE DES ECHANTILLONS DE LA SIMULATION ( 6% ATOMIQUE DE TCF ).

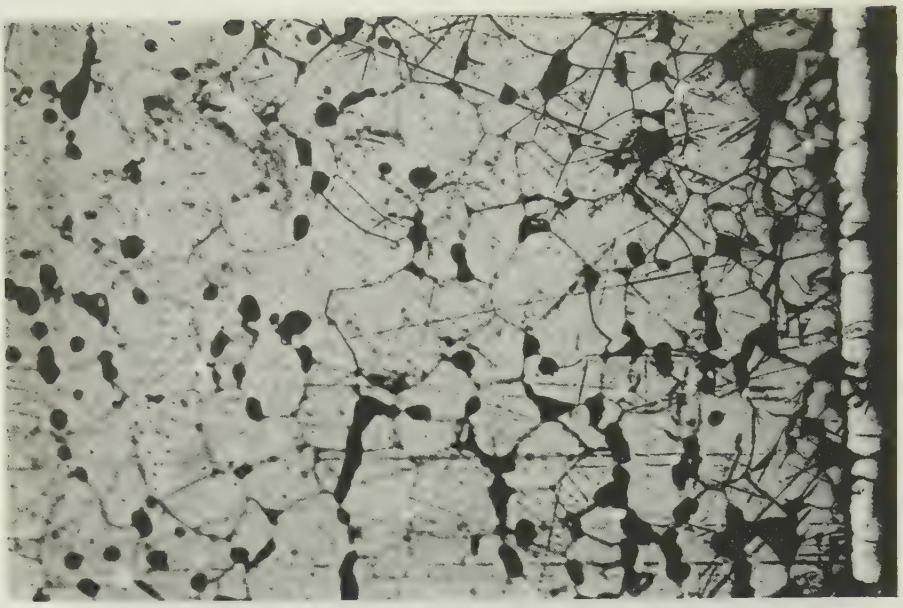
× 800

6c_ UNE DES INCLUSIONS AVEC L'ASPECT BIPHASE



355× 1,5

6d_ASPECT D'UN ECHANTILLON APRES TRAITEMENT THERMIQUE. AVEC LE GROSSISSEMENT DE GRAINS ON CONSTATE L'APPARITION DES INCLUSIONS A L'INTERIEUR DES GRAINS.



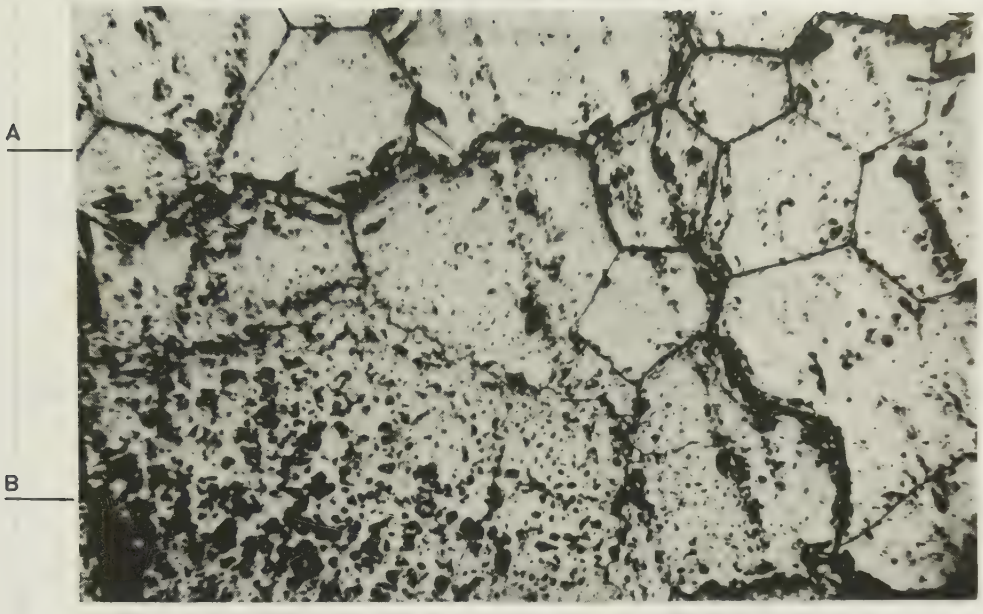
144×1,5

7a_ ASPECT MICROGRAPHIQUE MONTRANT UNE COUCHE DE TUNGSTENE FORMEE SUR L'ECHANTILLON APRES 6H. A 2000° C. LES INCLUSIONS SONT CONSTITUEES DE PRODUITS DE FISSION ET EXEMPTES DE TUNGSTENE.

144×1,5

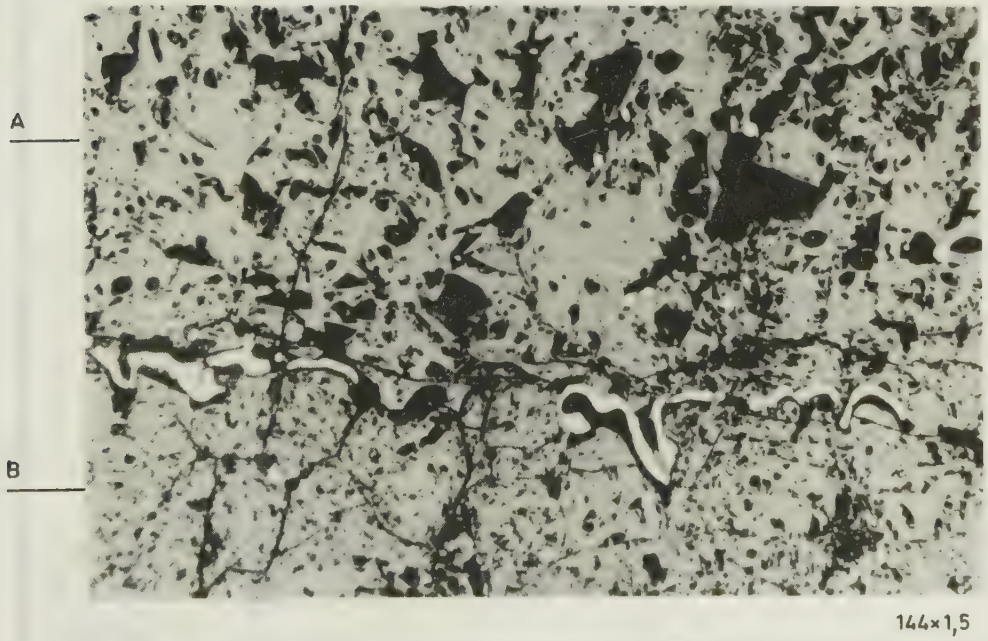
7b_ ASPECT DE L'ECHANTILLON EN CONTACT AVEC LA CELLULE EN TUNGSTENE LES TACHES BLANCHES SONT CONSTITUEES DE TUNGSTENE.

Fig. 7 _ ASPECT MICROGRAPHIQUE D'ECHANTILLON DE LA SIMULATION (6% ATOMIQUE TCF) MONTRANT LE MANQUE DE COMPATIBILITE AVEC LE CREUSET DE TUNGSTENE.




23×1,5

7c _ ASPECT MICROGRAPHIQUE DE LA ZONE DE CONTACT DES ECHANTILLONS, INITIALEMENT INTERPOSES DE COMBUSTIBLE SIMULE (A) ET TEMOIN (B)_ LE LISERE ENTOURANT L'ECHANTILLON TEMOIN EST CONSTITUE DE TUNGSTENE.




144×1,5

7d _ DETAIL DE LA FIGURE 7c.

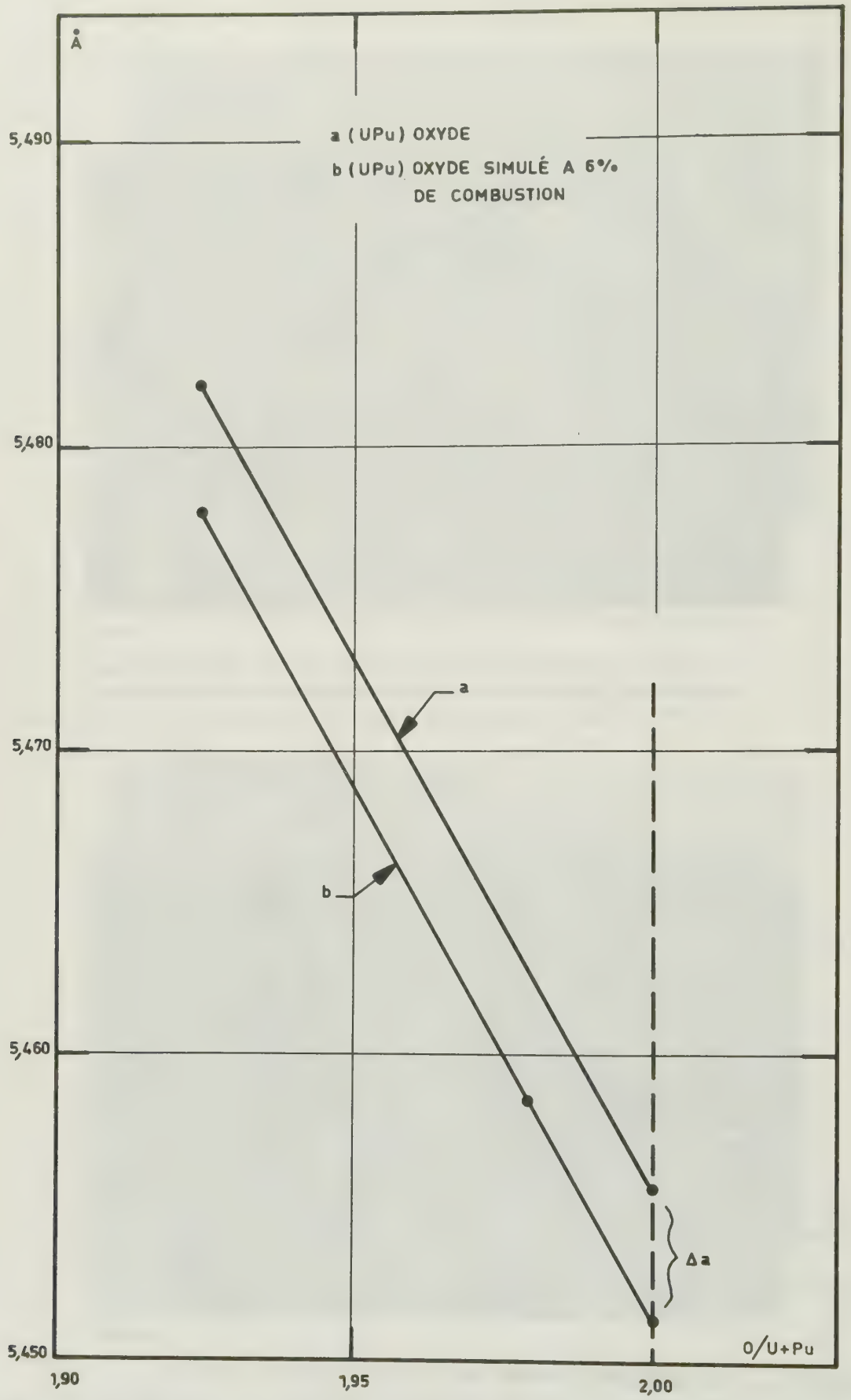
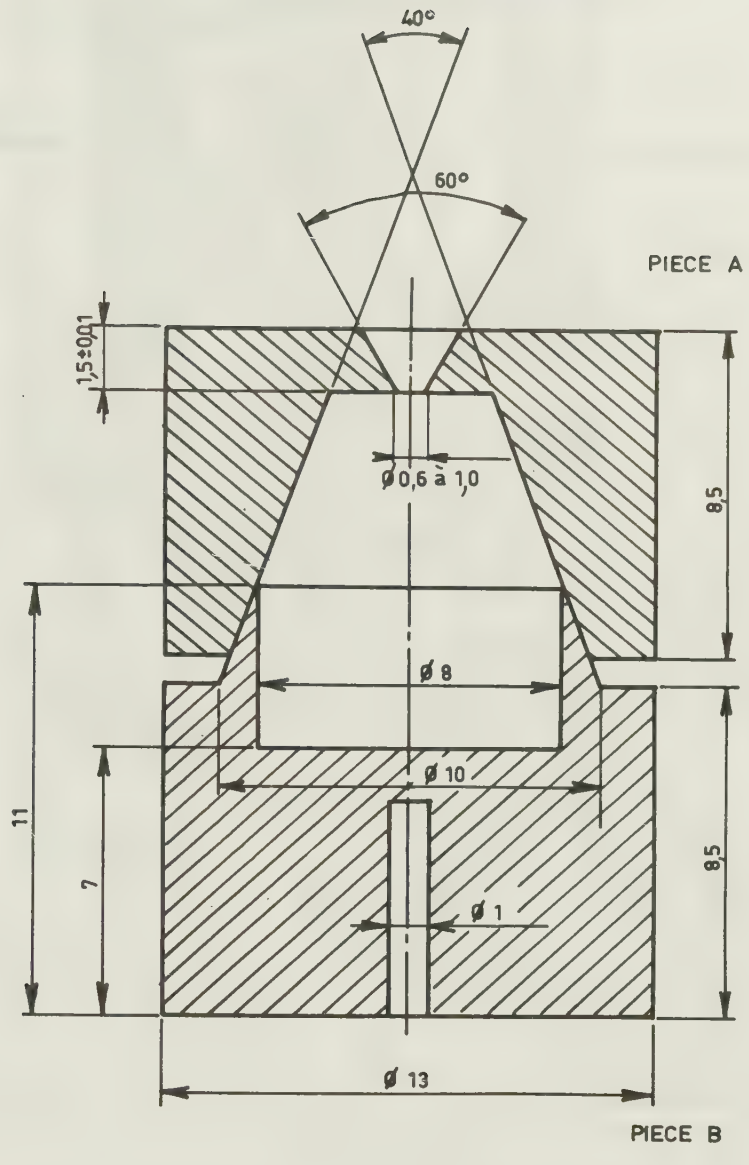



Fig.8 _VARIATION DU PARAMETRE CRISTALLIN EN FONCTION DU RAPPORT O/U+Pu D'UN OXYDE MIXTE DE SIMULATION DE 6% TCF (b) COMPARE A UN OXYDE MIXTE PUR A CONCENTRATION EGALE EN Pu (a).




ECH. 5
COTES EN mm

Fig. 9 _ CELLULE D'EFFUSION EN TUNGSTENE

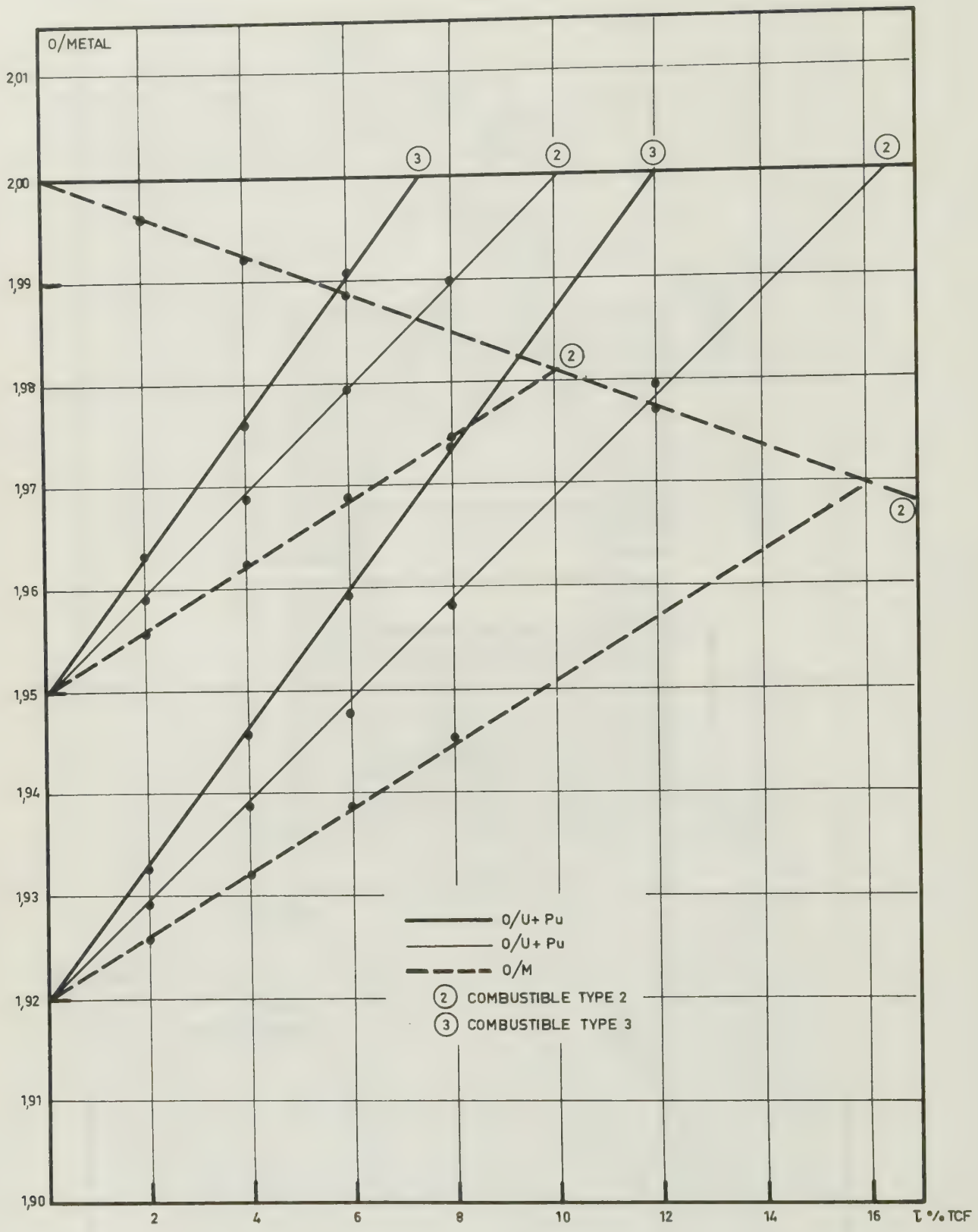



Fig.10 _EVOLUTIONS DES RAPPORT O/U+Pu ET O/M EN FONCTION DU TAUX DE COMBUSTION, DANS LES COMBUSTIBLES 2 ET 3.

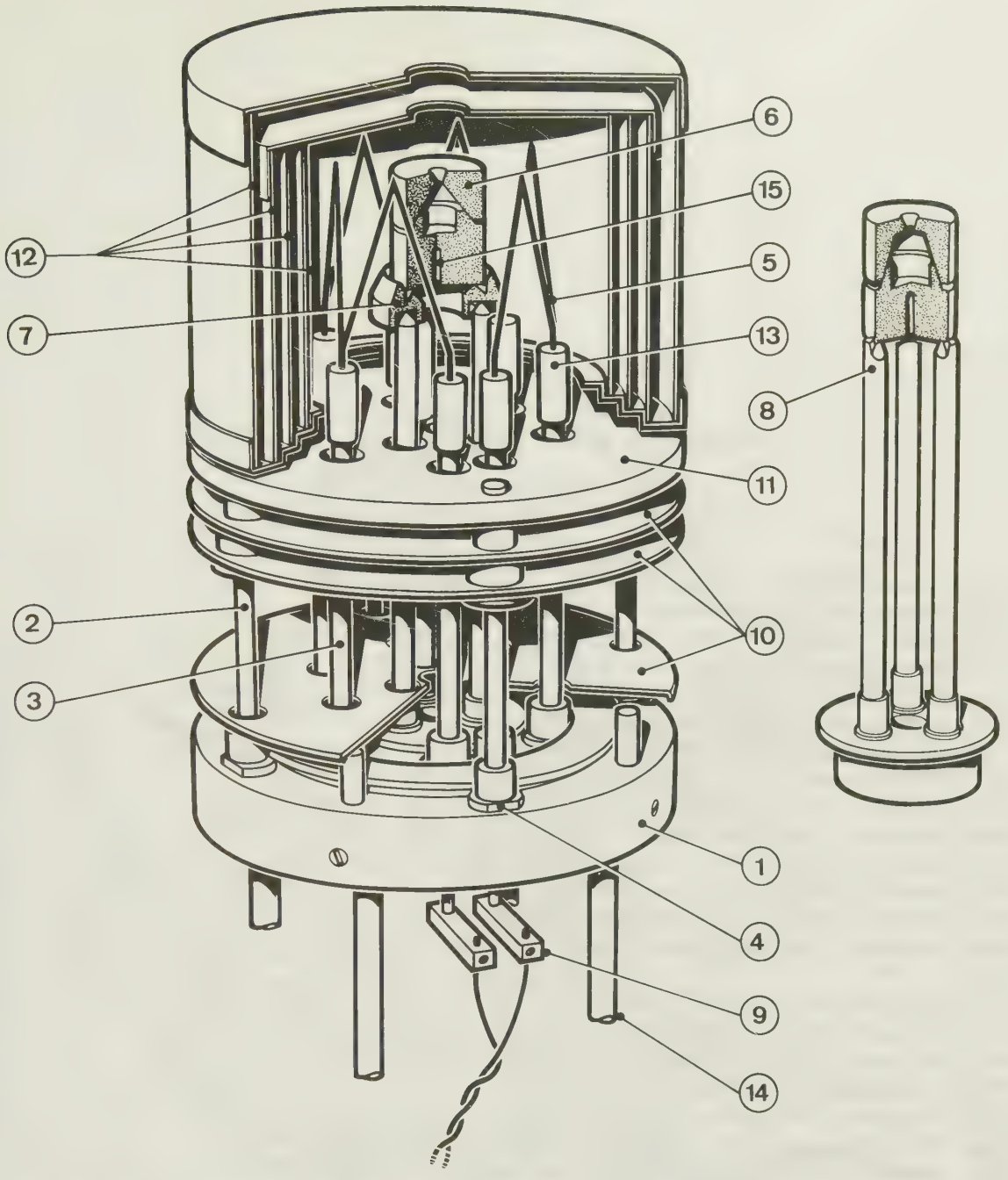



FIGURE 11

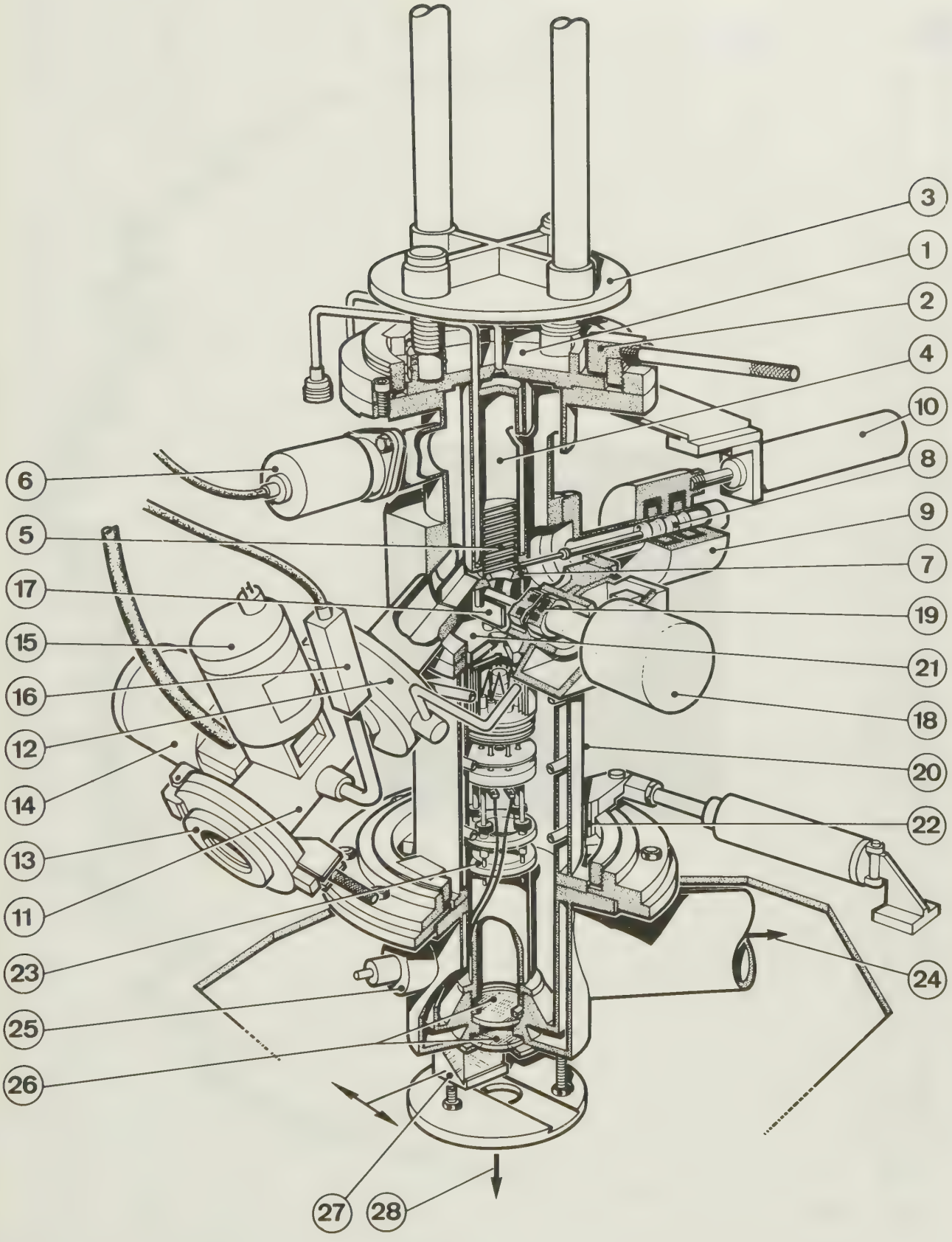
FOUR DE BOMBARDEMENT ELECTRONIQUE

1. Base en acier inoxydable
2. Quatre tiges de support en tungstène
3. Sept tiges en tungstène de support de filaments dont deux sont l'arrivée de courant.
4. Isolation en alumine
5. Filaments en tungstène
6. Enceinte d'effusion
7. Support de l'enceinte en tungstène posé sur des tiges pointues
8. Tiges "couteaux"
9. Arrivée de courant
10. Ecrans inférieurs
11. Support en molybdène des écrans supérieurs
12. Ecrans supérieurs
13. Support de filament
14. Quatre tiges de support du four
15. Trou pour mesure de la température

FIGURE 12

APPAREIL D'EFFUSION

1. Couvercle
2. Vérrouillage manuel
3. Vers système de transfert
4. Stockeur de cibles
5. Cibles
6. Jauge de vide secondaire
7. Diaphragme de faisceau moléculaire
8. Ejecteur
9. Aimant extérieur
10. Verrin pneumatique
11. Sas de récupération de cible
12. Vanne papillon manuelle
13. Porte de récupération de cible
14. Vanne électromagnétique
15. " "
16. Jauge de vide primaire
17. Volet d'obturation
18. Moteur de volet
19. Couplage des aimants
20. Corps inférieur
21. Diaphragme refroidi à l'eau
22. Verrouillage pneumatique au niveau de travail
23. Four à bombardement électronique et enceinte d'effusion
24. Vers le système de vide
25. Arrivée de courant
26. Fenêtre transparente en quartz optique
27. Prisme de reflexion à 90°
28. Vers le pyromètre optique automatique


3
1
2
4
10
8
6
9
5
7
17
19
15
21
16
18
12
20
14
22
13
24
11
23
25
26
27
28

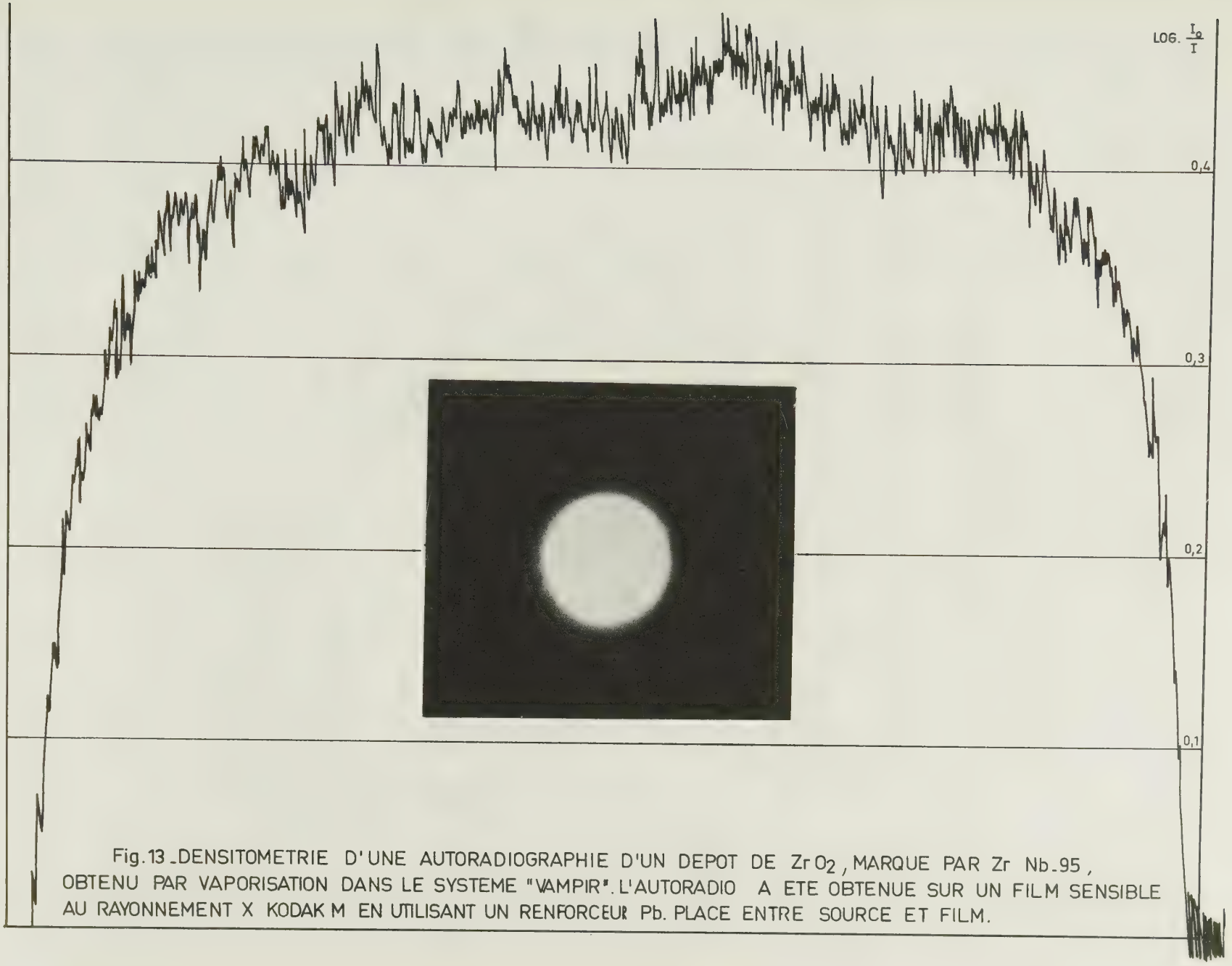



Fig. 13 _DENSITOMETRIE D'UNE AUTORADIOGRAPHIE D'UN DEPOT DE $ZrO_2$, MARQUE PAR Zr Nb-95, OBTENU PAR VAPORISATION DANS LE SYSTEME "VAMPIR". L'AUTORADIO A ETE OBTENUE SUR UN FILM SENSIBLE AU RAYONNEMENT X KODAK M EN UTILISANT UN RENFORCEUR Pb. PLACE ENTRE SOURCE ET FILM.

FIGURE 14

L'INSTALLATION "VAMPIR"

(Vaporisation de Matériaux Post-Irradiation)

1. Appareil d'effusion
2. Système de transfert
3. Chargeur de cibles
4. Protection alpha
5. Stockeur d'échantillons irradiés
6. Panneau arrière
7. Panneau avant
8. Sas La Calhène
9. Trou d'homme
10. Groupe de vide
11. Protection gamma en plomb
12. Hublot avant
13. Hublot arrière
14. Porte arrière supérieure
15. Porte arrière inférieure
16. Trou de visé de la température
17. Alimentation d'eau et d'air comprimé
18. Télémanipulateur
19. Filtres
20. "
21. "
22. Alimentation d'eau
23. Panneau des régulateurs pneumatiques
24. Pupitre de commande
25. Armoire haute tension
26. Appareils de mesure de vide
27. Pyromètre optique.

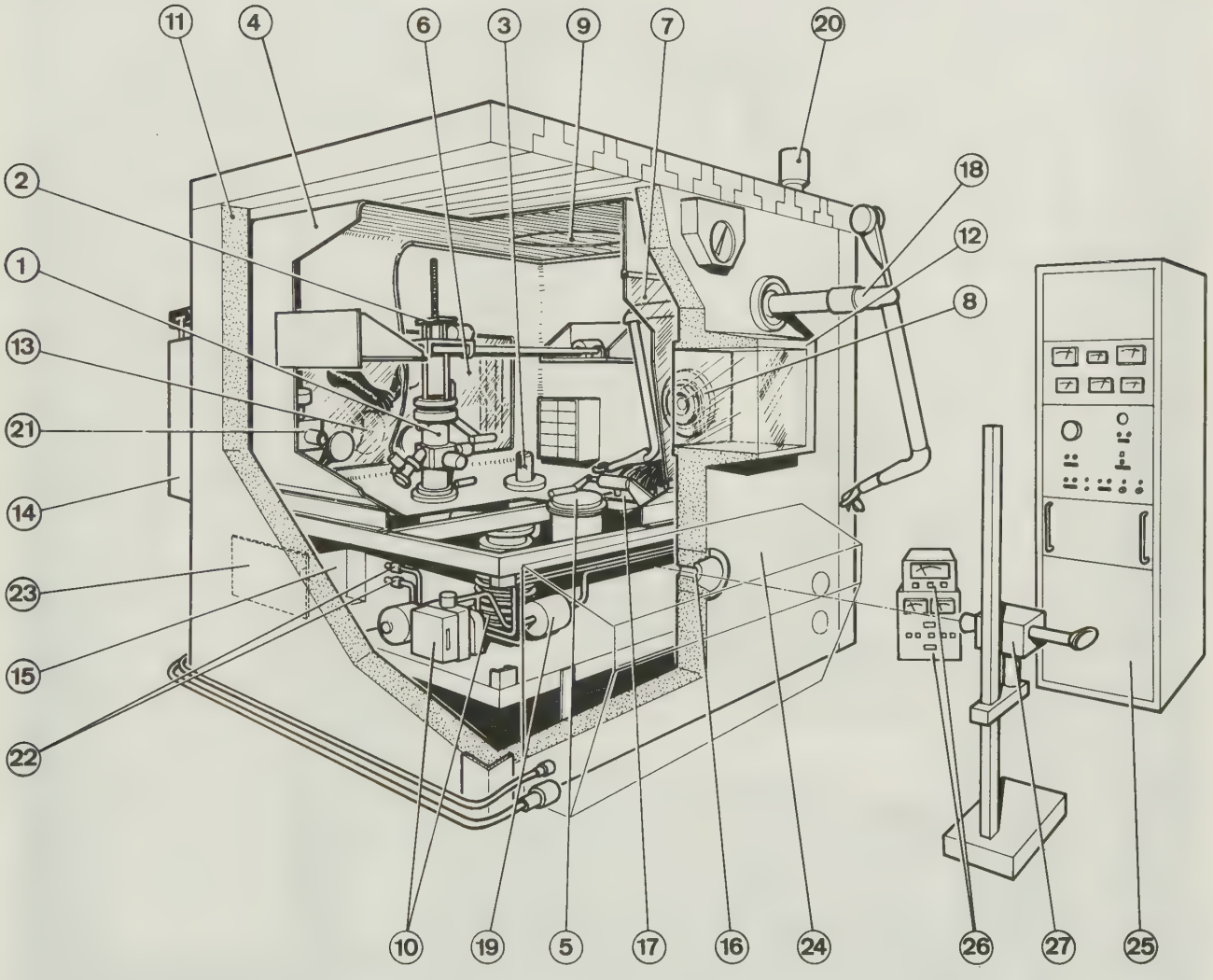

11
4
6
3
9
7
20
2
18
1
12
8
13
21
14
23
15
22
10
19
5
17
16
24
26
27
25

Fig.15_IMPLANTATION DE L'ENSEMBLE DE L'INSTALLATION "VAMPIR" DANS LE LABO.

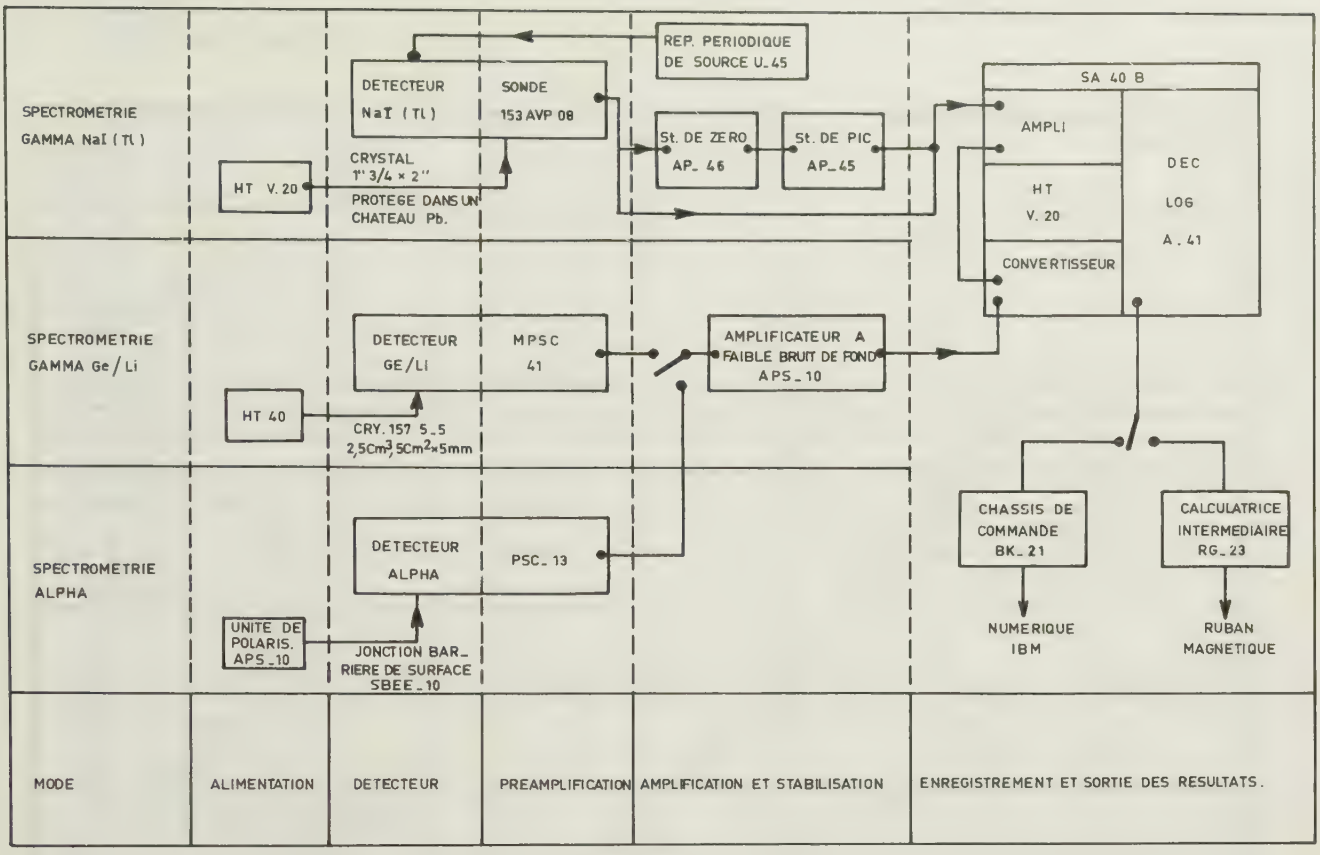



Fig.16 _ SCHEMA SYNOPTIQUE DU SYSTEME DE SPECTROMETRIE ALPHA ET GAMMA

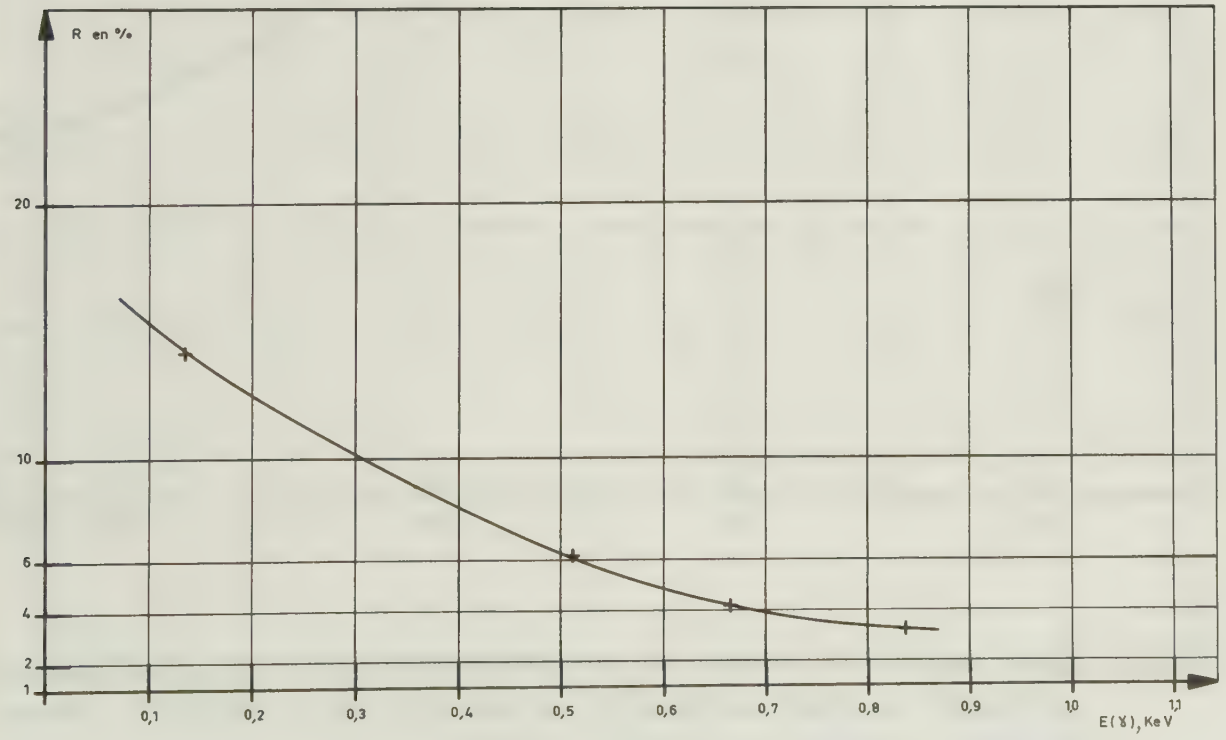



Fig.17 _ RENDEMENT DE COMPTAGE DU DETECTEUR Na I EN FONCTION DE L'ENERGIE DU RAYONNEMENT, L'ECHANTILLON ETANT EN CONTACT AVEC LE DETECTEUR.

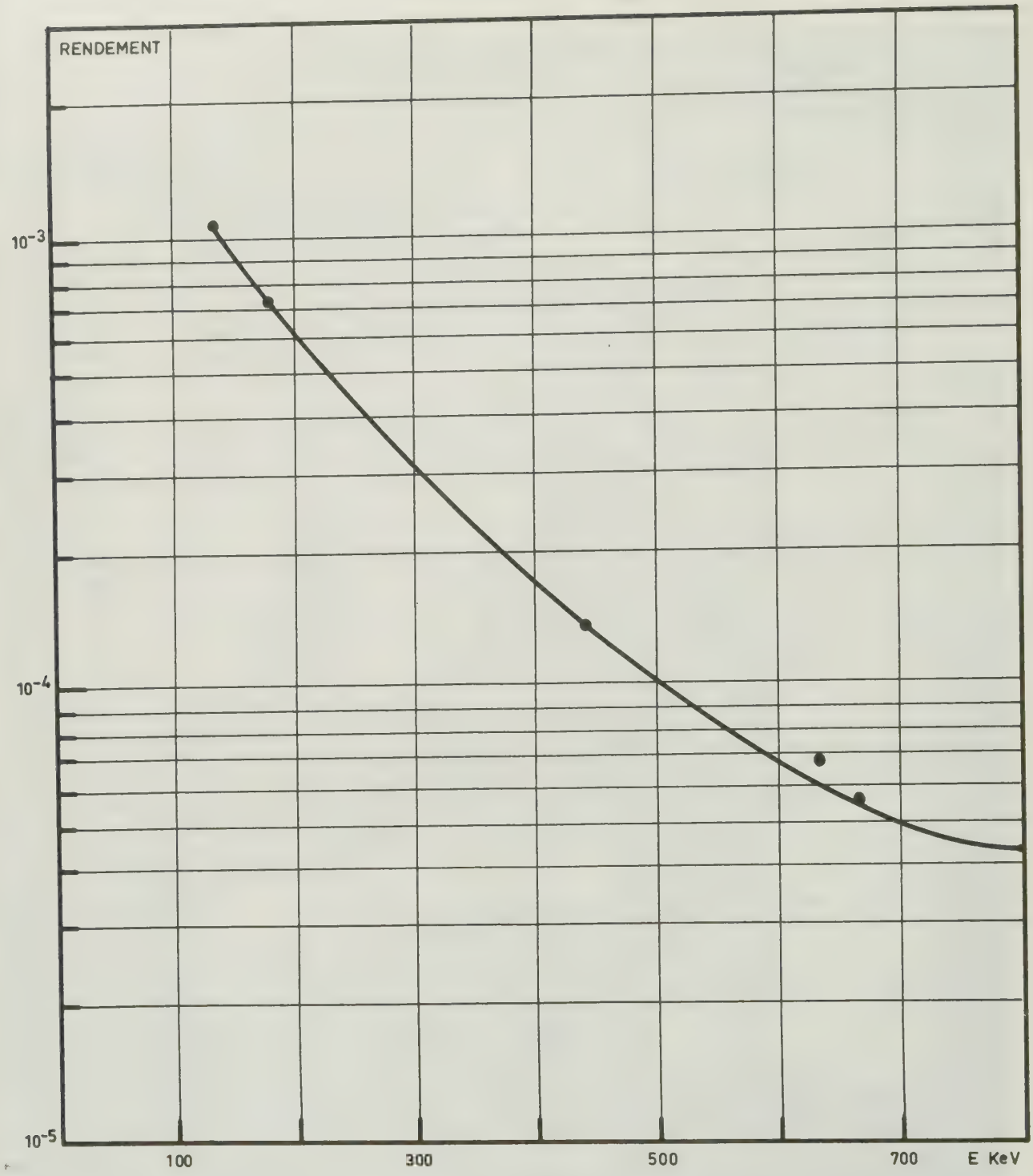



Fig.18 _ RENDEMENTS DE COMPTAGE DU DETECTEUR Ge (Li) EN FONCTION DE L'ENERGIE DU RAYONNEMENT $\gamma$ ( DIAMETRE DE LA SOURCE = 26mm DISTANCE SOURCE-DETECTEUR = 100 mm ).

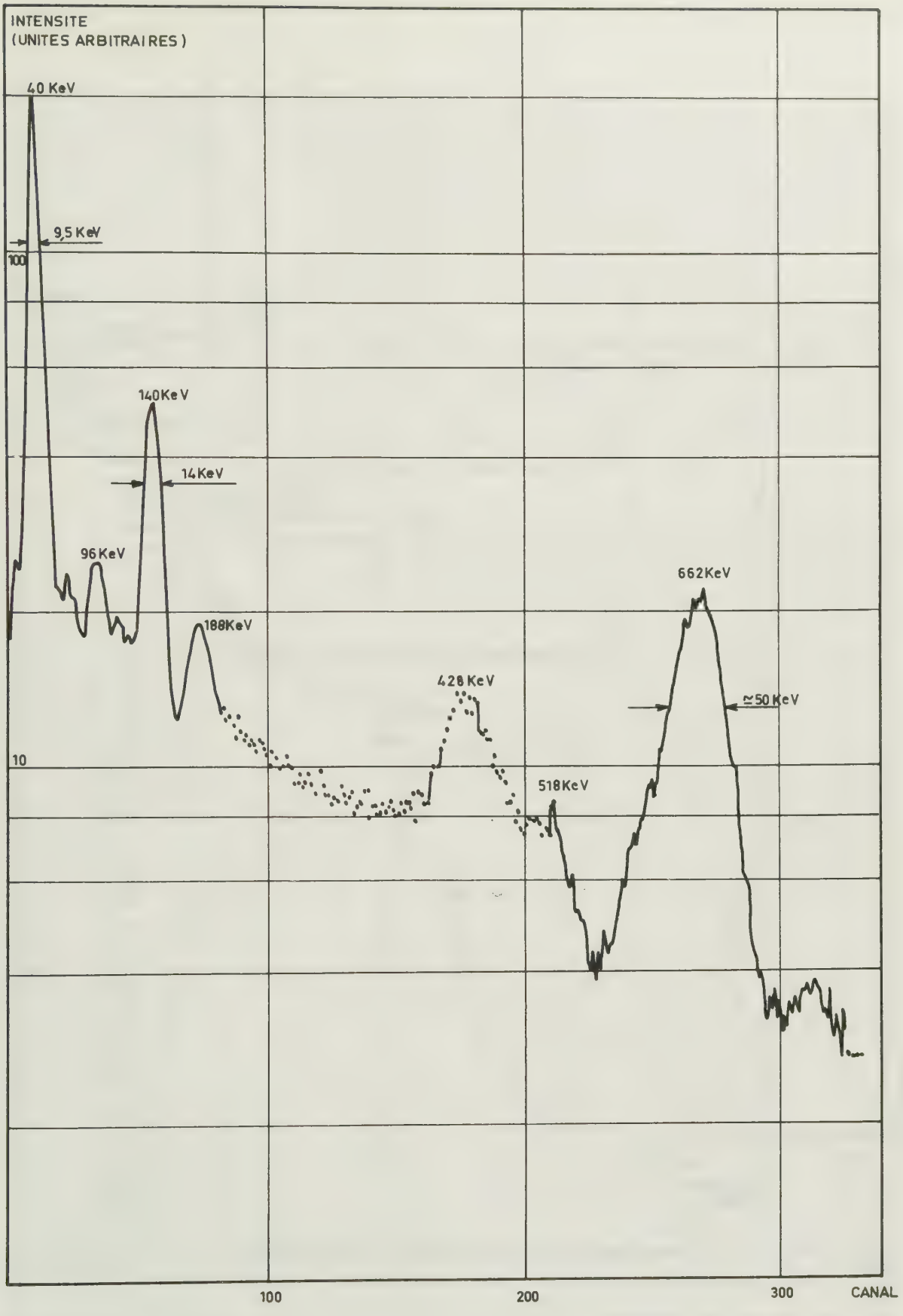



Fig.19 _ SPECTRE "TYPE" D'UN DEPOT DE VAPORISATION (CIBLE 47) OBTENU A L'AIDE DU DETECTEUR NaI (Tl).

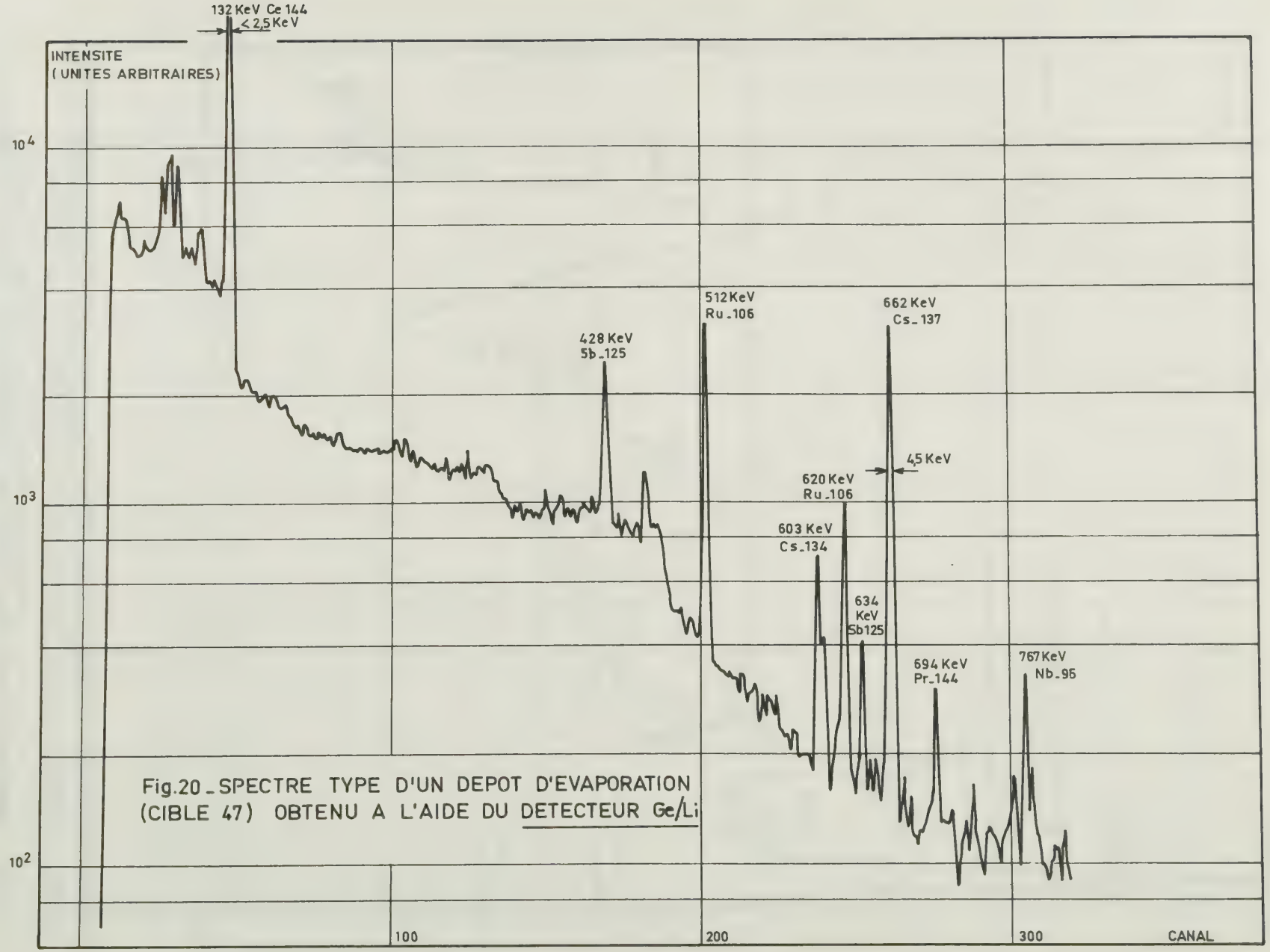



Fig.20_SPECTRE TYPE D'UN DEPOT D'EVAPORATION
(CIBLE 47) OBTENU A L'AIDE DU DETECTEUR Ge/Li

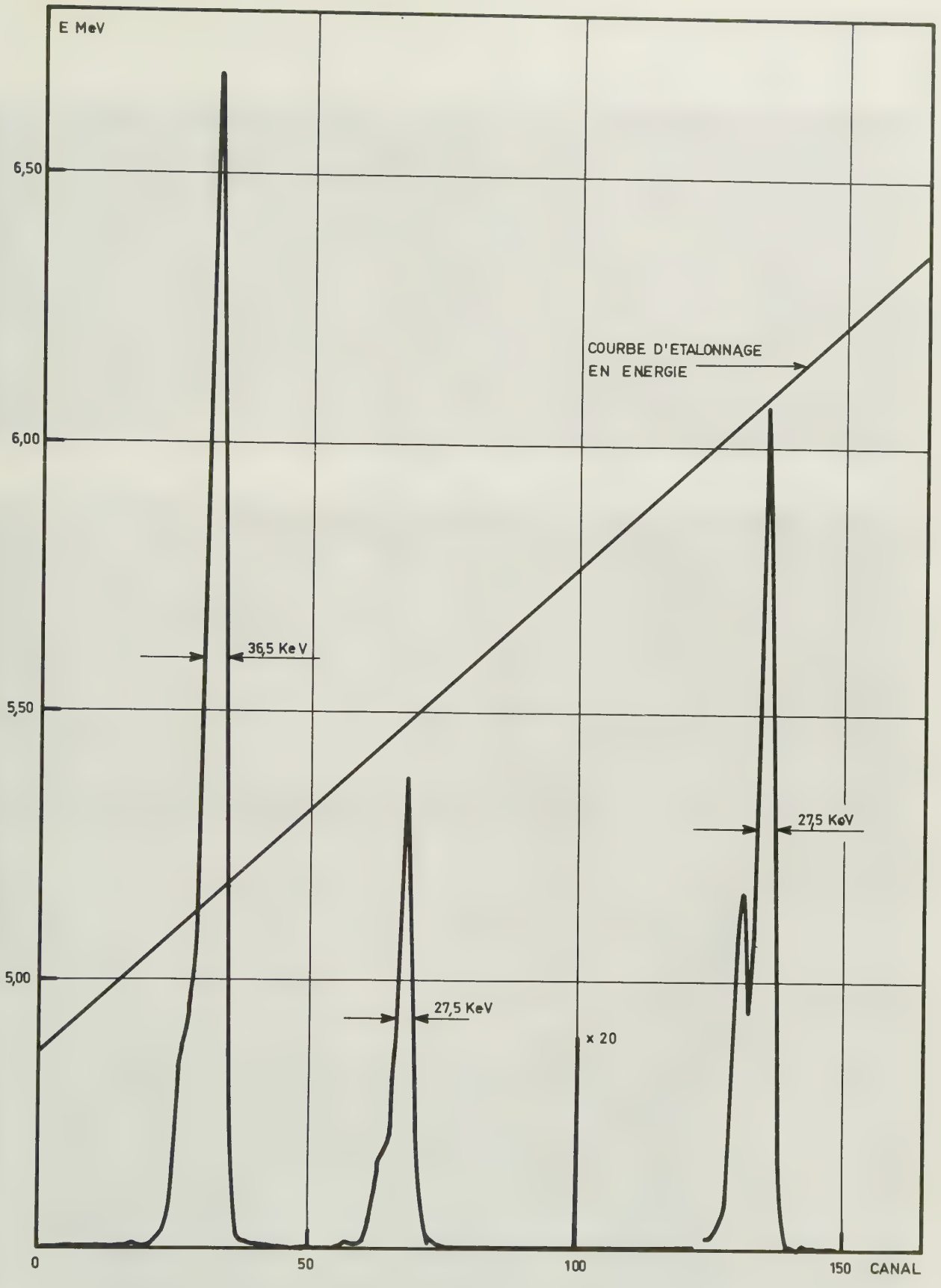
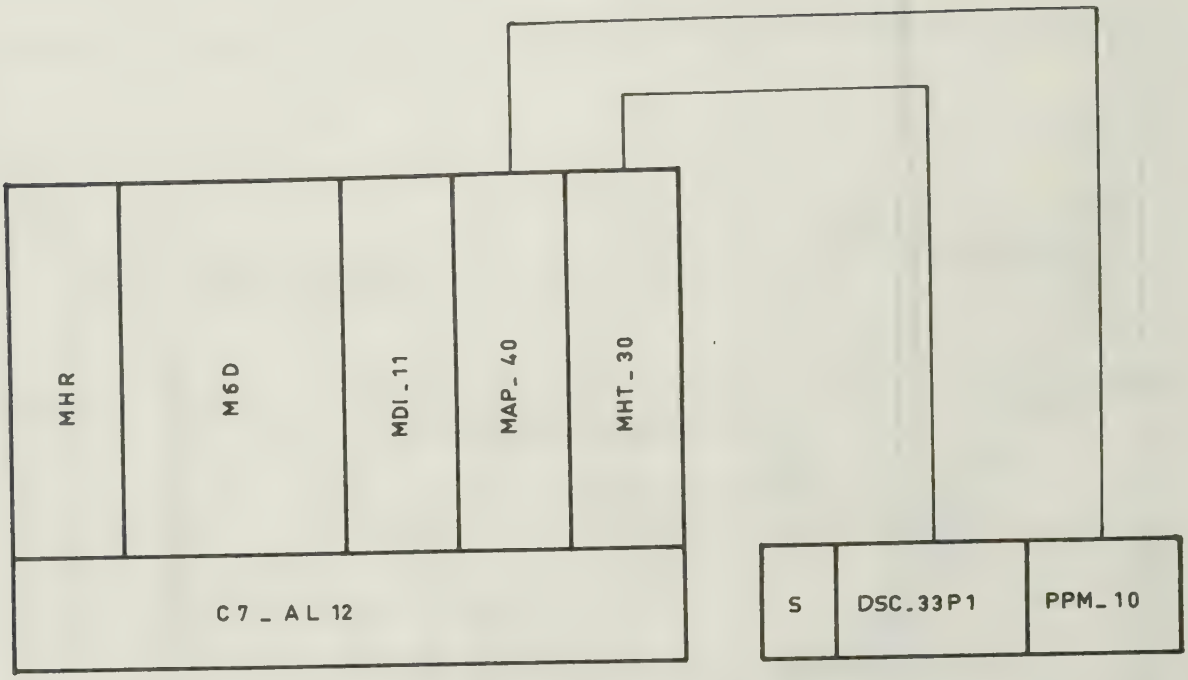



Fig. 21 _ SPECTRE TYPIQUE DU RAYONNEMENT $\alpha$ DES CIBLES D'EVAPORATION
( AMPLIFICATION : 9,09 KeV/canal ).




| | |
|---|---|
| C7_AL12 | ALIMENTATION |
| MHT_30 | HAUTE TENSION |
| MAP_40 | AMPLIFICATEUR |
| MDI_11 | DISCRIMINATEUR |
| M6D_11 | ECHELLE DE COMPTAGE $10^6$ |
| MHR | HORLOGE |
| | |
| PPM-10 | PREAMPLIFICATEUR |
| DSC_33P1 | DETECTEURS |
| S | SCINTILATEUR ZnS OU ORGANIQUE |

Fig. 22 _ ECHELLE DE COMPTAGE $\alpha$ ET $\beta$.

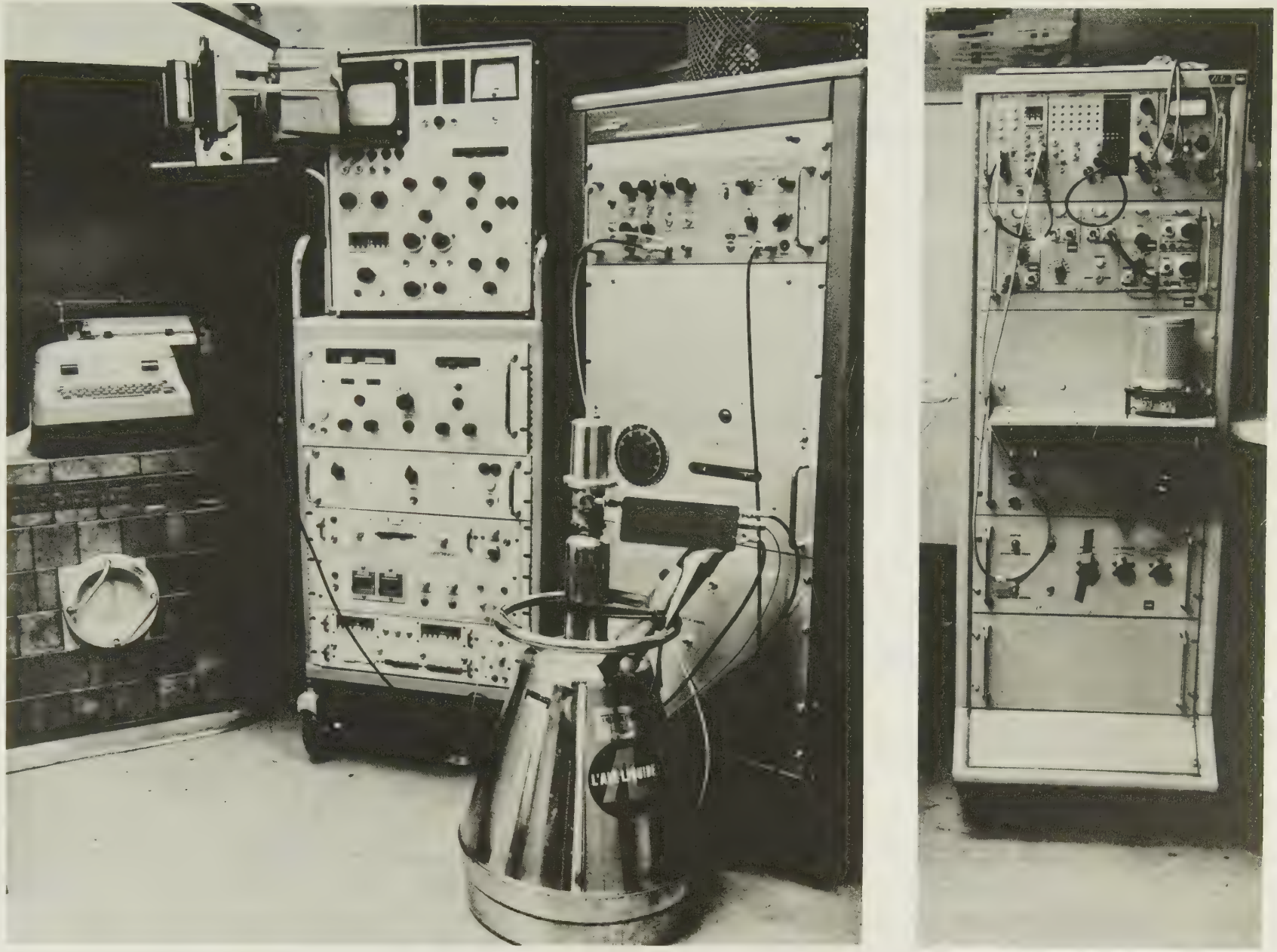


Fig. 23 - IMPLANTATION DE L'INSTALLATION DE COMPTAGE DANS LE LABORATOIRE -

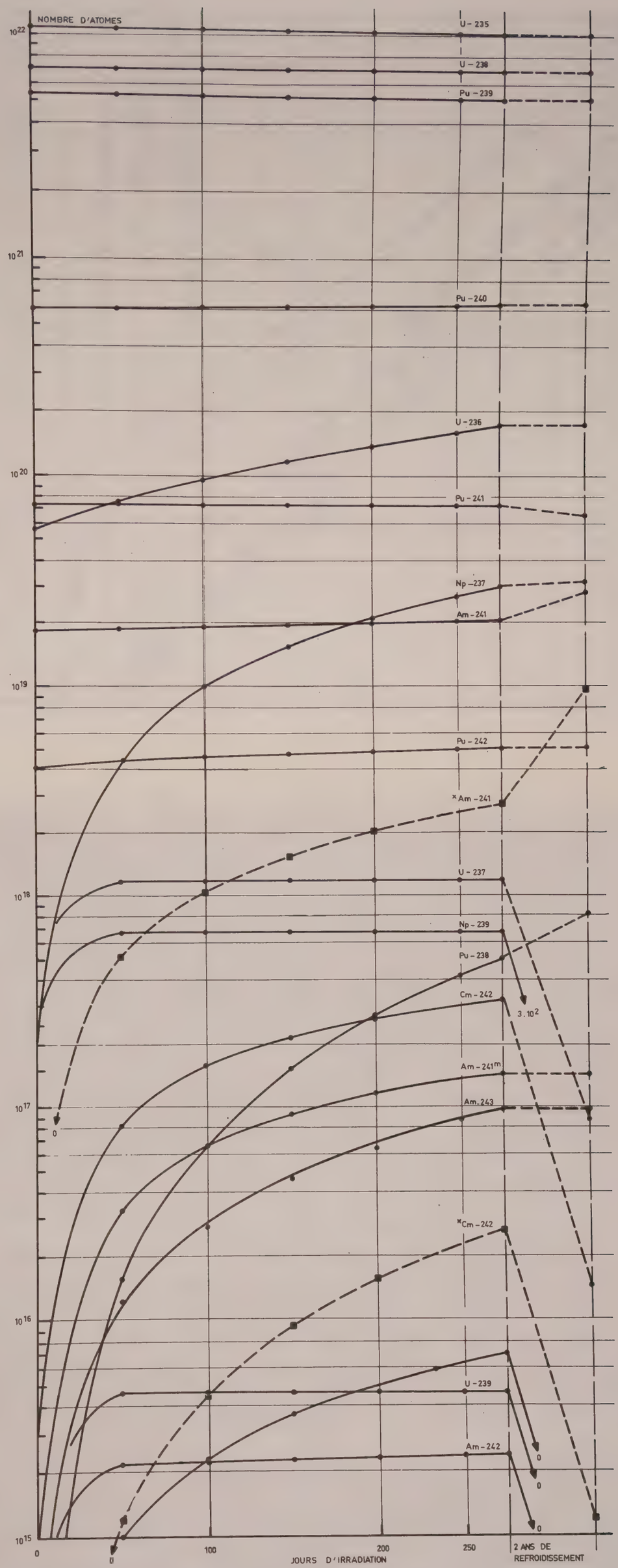



Fig. 24 – ÉVOLUTION PAR CAPTURE DE LA CONCENTRATION EN ATOMES LOURDS DANS L'ECHANTILLON IRRADIE, EXPRIME PAR RAPPORT A 1 $Cm^3$ DU COMBUSTIBLE INITIAL.

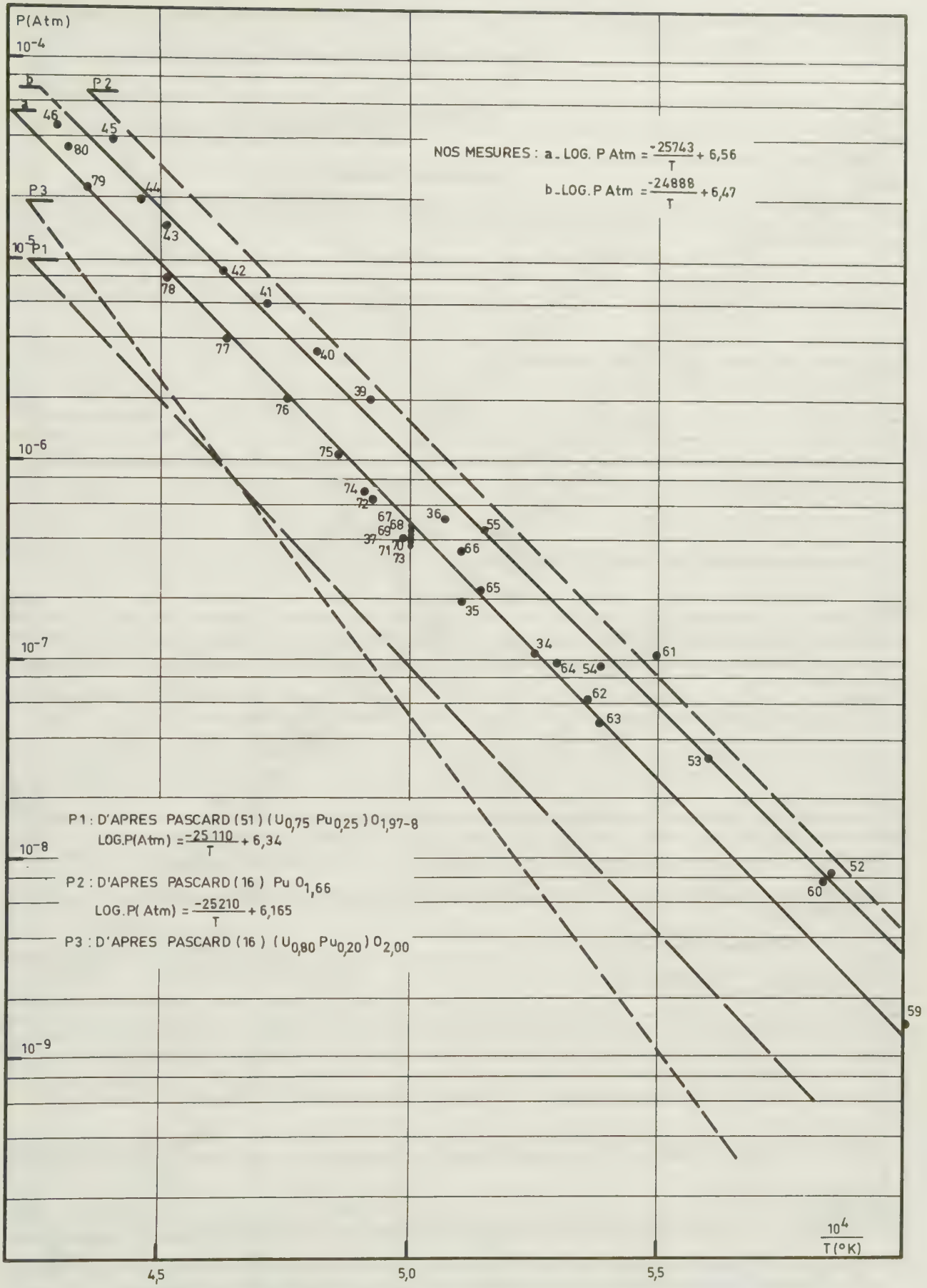



Fig.25 _ TENSION DE VAPEURS DE PLUTONIUM AU DESSUS DU COMBUSTIBLE IRRADIE EN ADMETTANT LA VAPORISATION DE $PuO_2$.

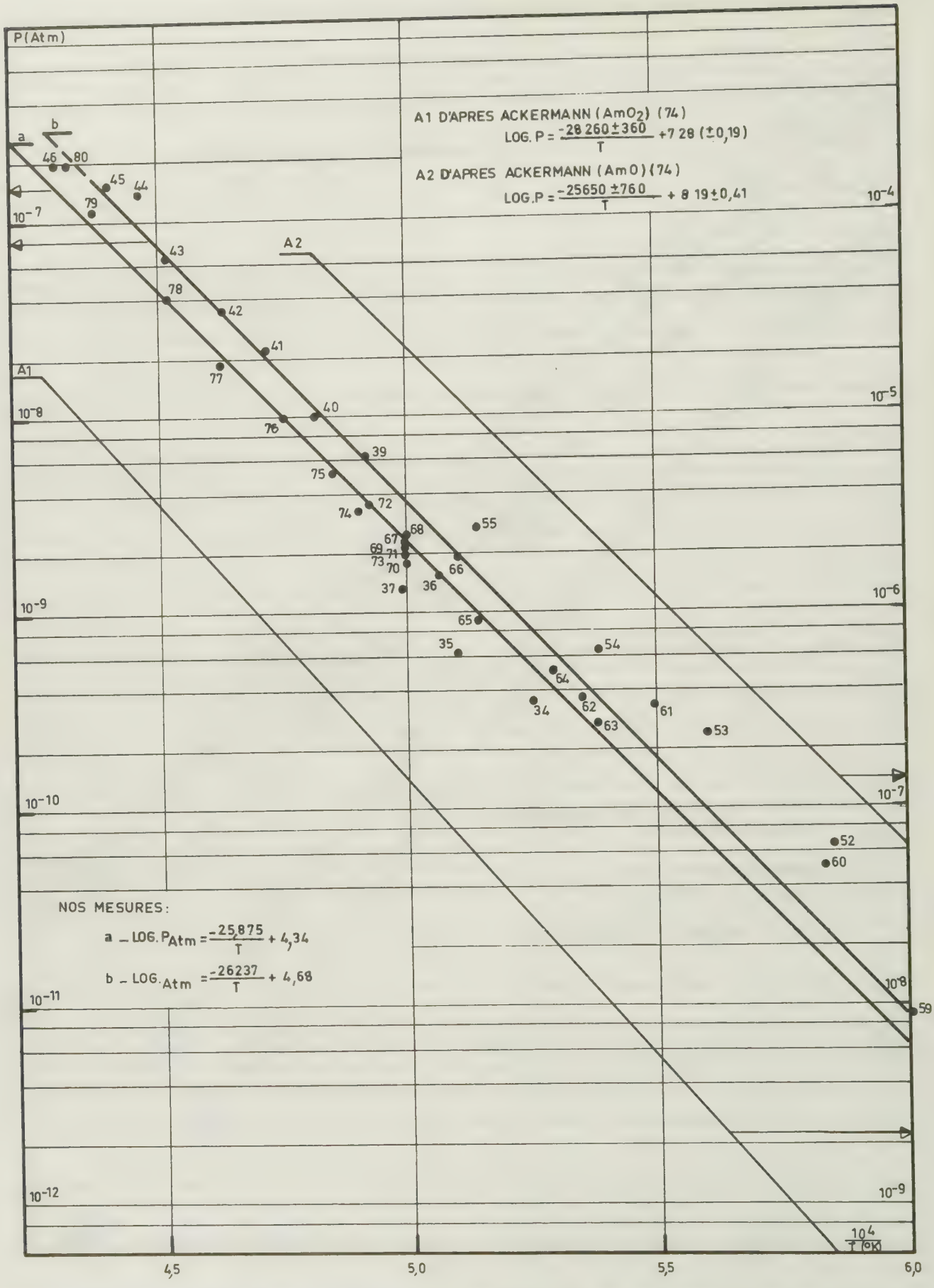



Fig.26 _TENSION DE VAPEURS DE Am AU DESSUS DU COMBUSTIBLE IRRADIE EN ADMETTANT LA VAPORISATION DE $AmO_2$

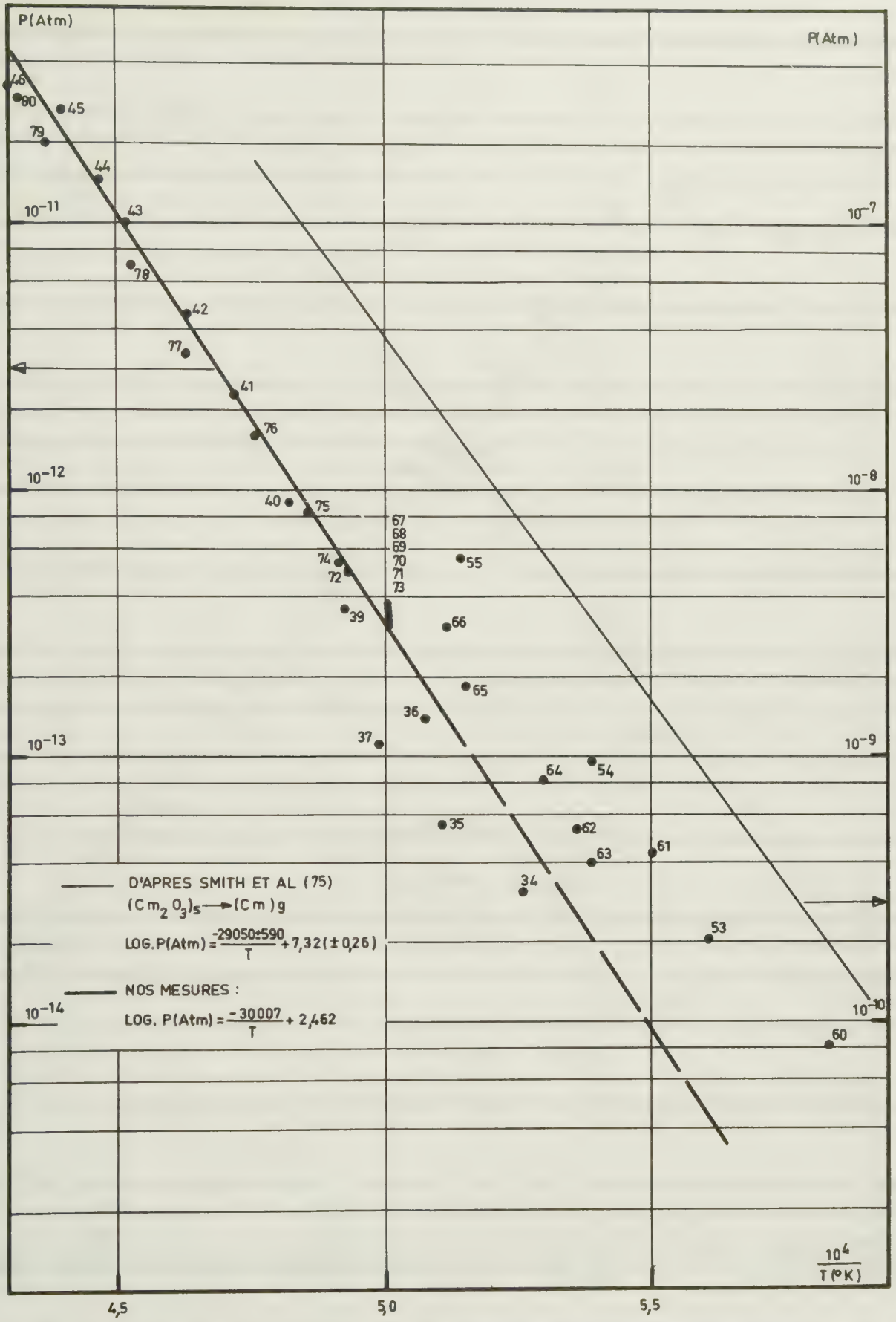



Fig.27 _TENSION DE VAPEURS DU Cm AU-DESSUS DU COMBUSTIBLE IRRADIE EN ADMETTANT LA VAPORISATION DE $Cm\,O_2$

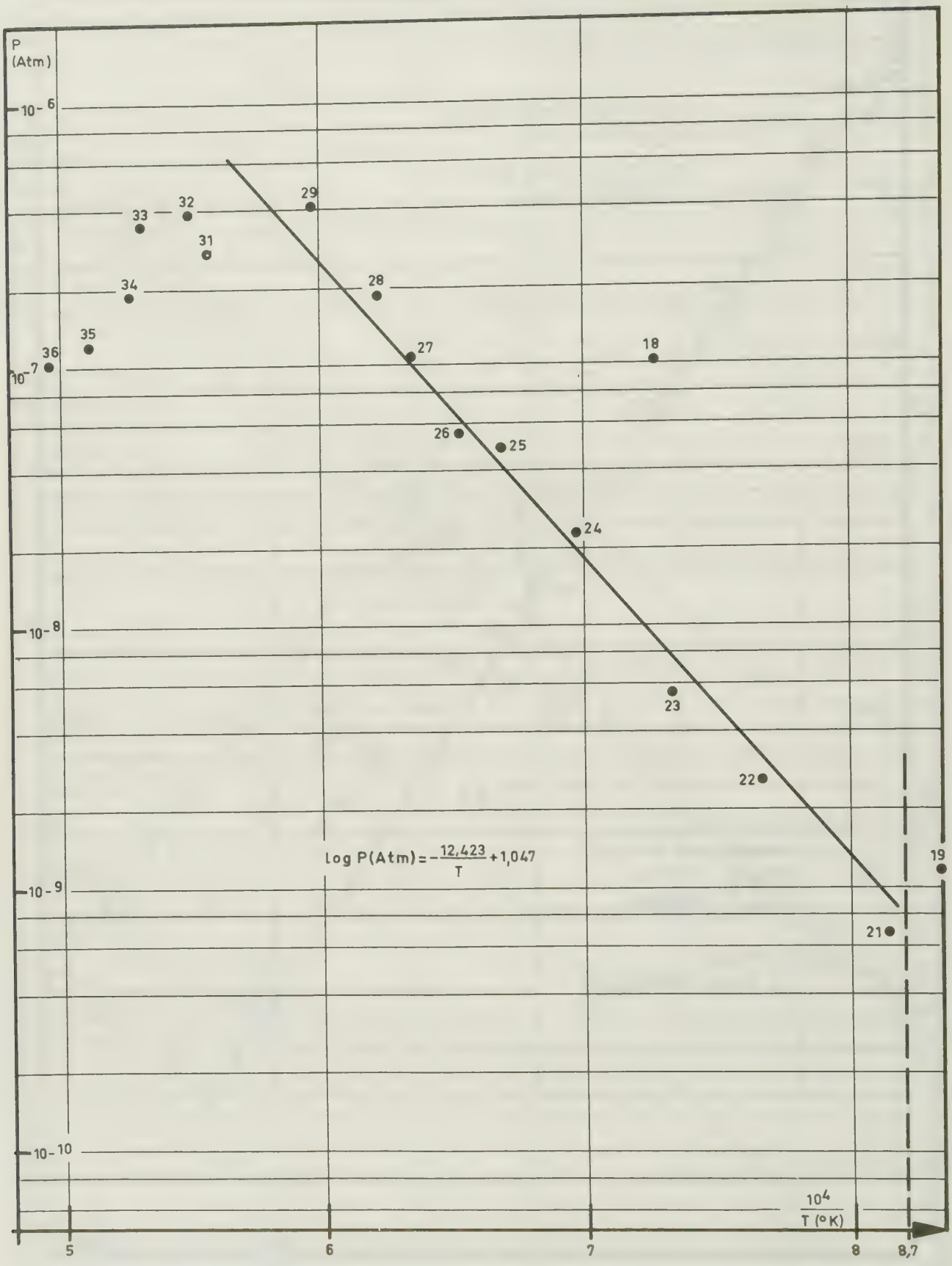



Fig. 28 - TENSION DE VAPEURS DE Cs (METAL) AU DESSUS DE L'ECHANTILLON DU COMBUSTIBLE IRRADIE DETERMINE D'APRES L'ACTIVITE DE L'ISOTOPE Cs-137

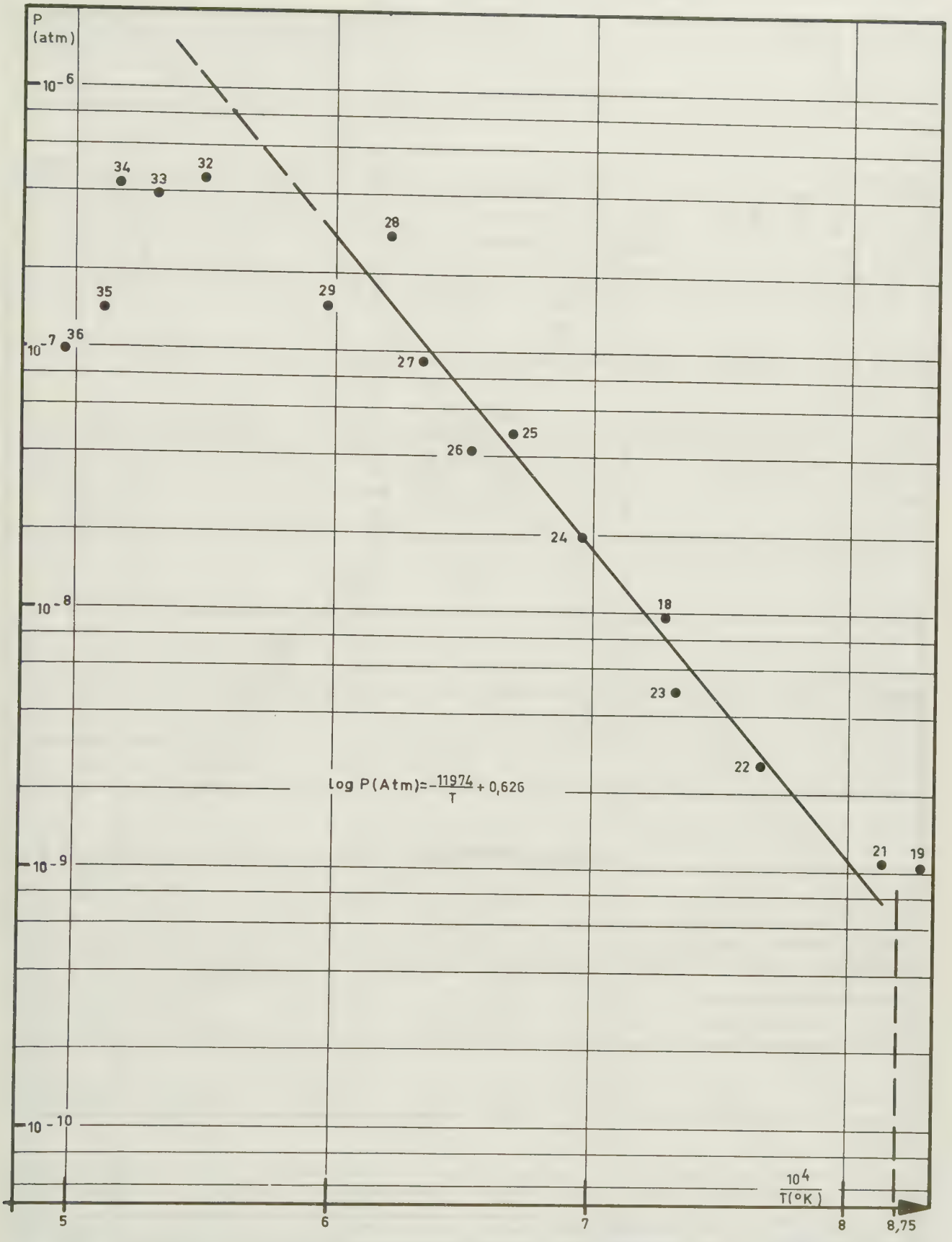



Fig.29 _TENSION DE VAPEURS DE Cs (METAL) AU DESSUS DE L'ECHANTILLON DU COMBUSTIBLE IRRADIE, DETERMINE D'APRES L'ACTIVITE DE L'ISOTOPE Cs.134

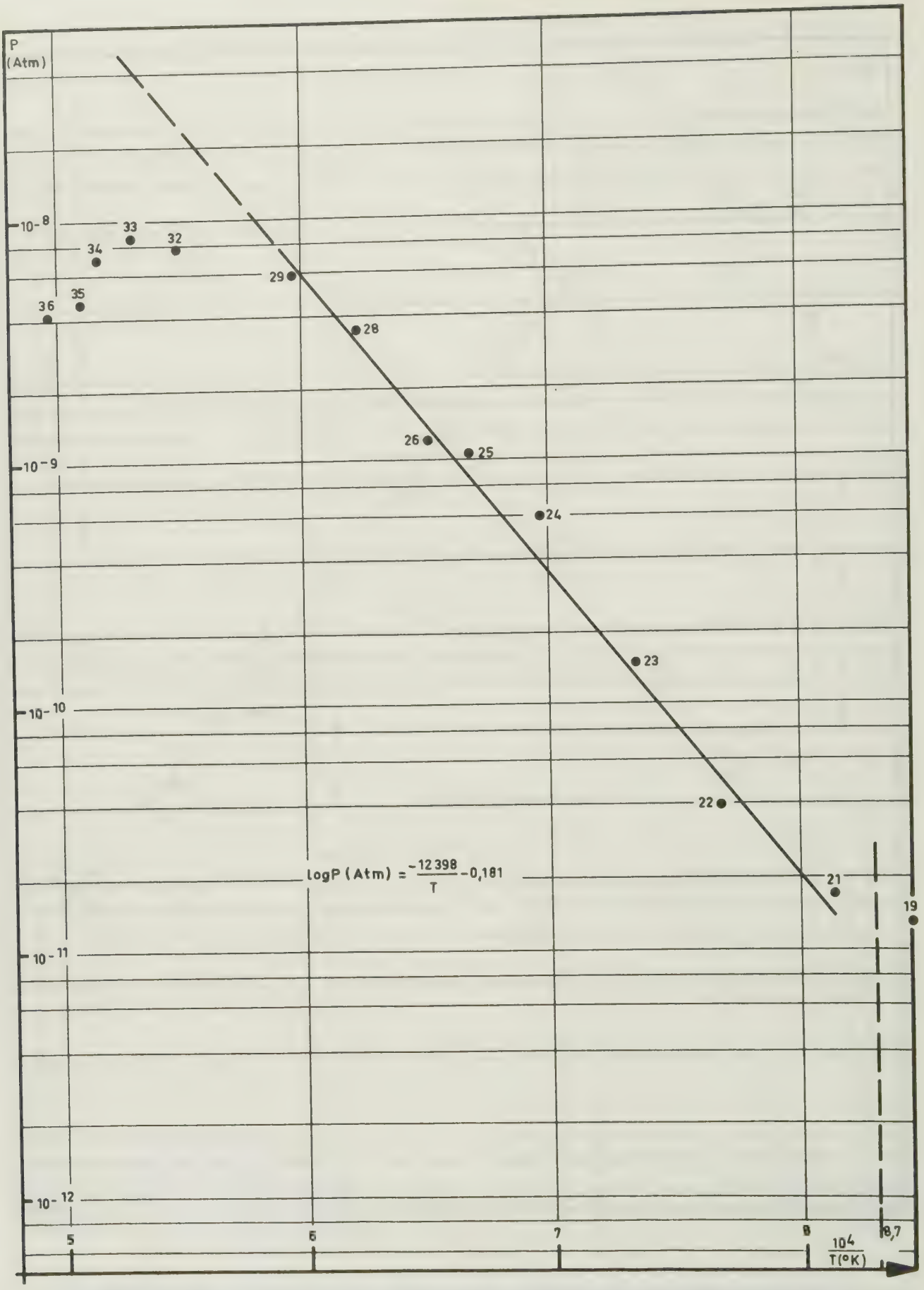



Fig.30_TENSION DE VAPEUR DE Sb (METAL) AU DESSUS DU COMBUSTIBLE IRRADIE DETERMINE D'APRES L'ACTIVITE DE L'ISOTOPE Sb_125 (RAIE DE 176 KeV).

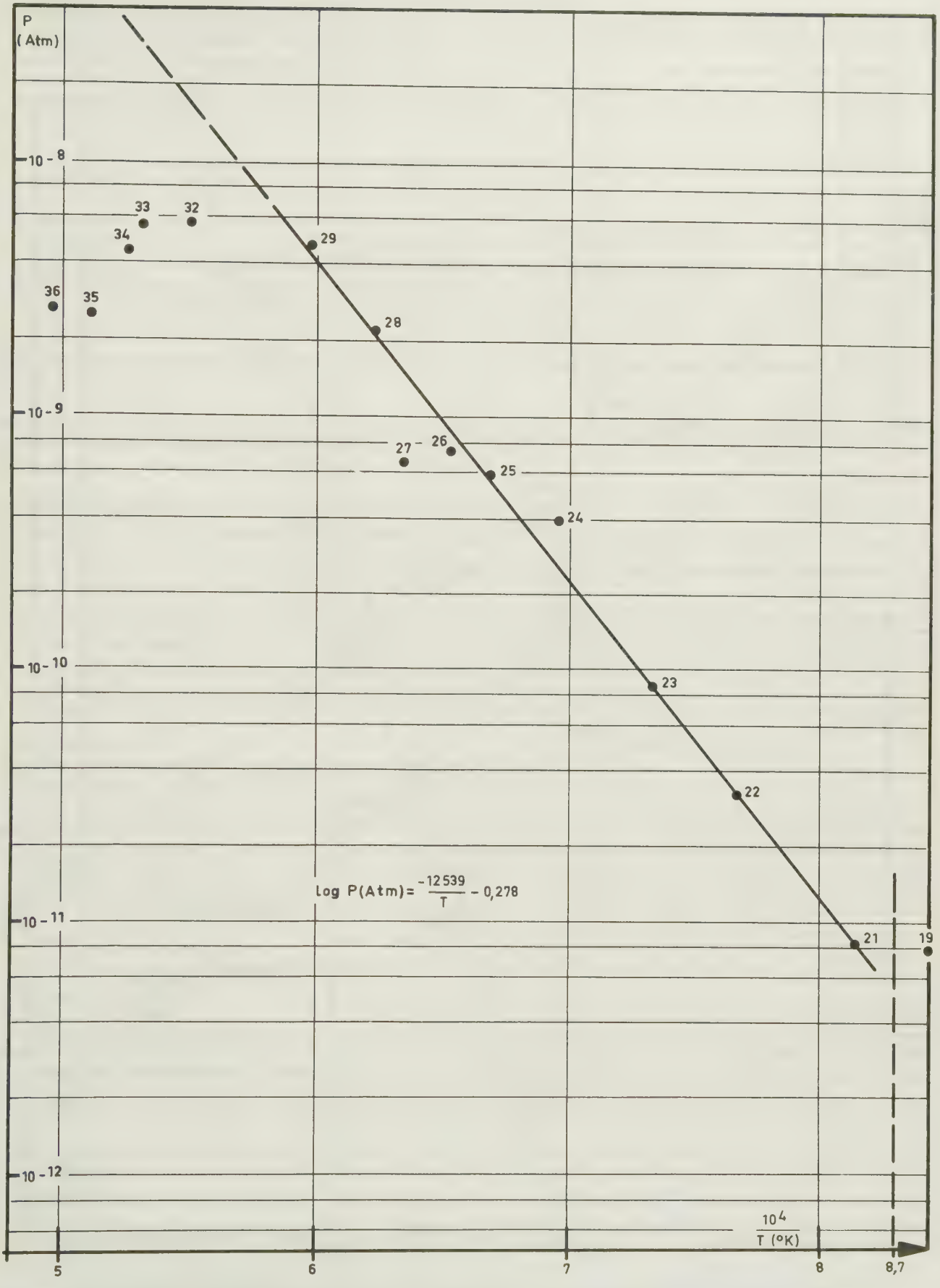



Fig.31 _TENSION DE VAPEURS DE Sb AU DESSUS DU COMBUSTIBLE IRRADIE DETERMINE D'APRES L'ACTIVITE DE Sb_125 ( RAIE DE 428 KeV ).

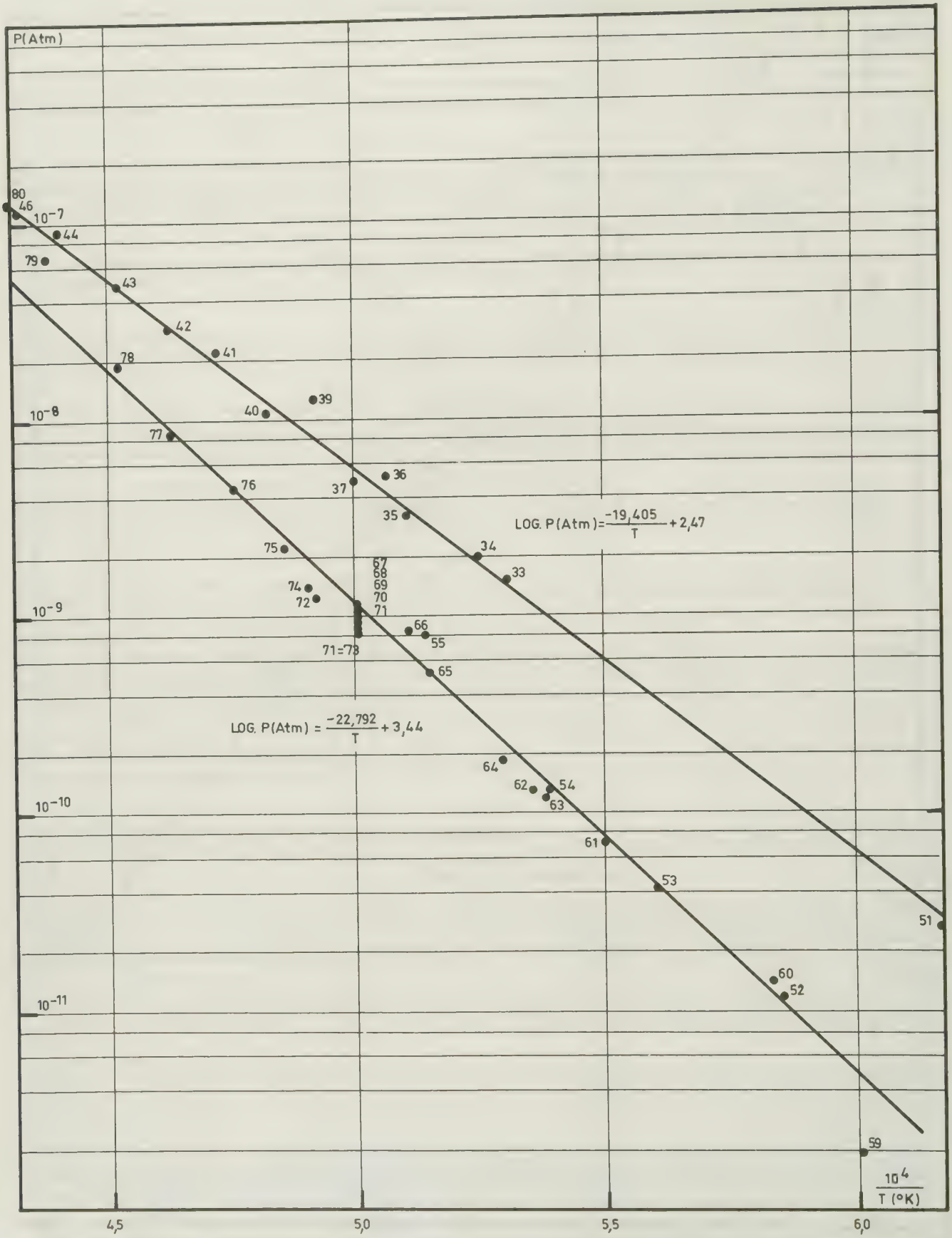



Fig.32 _TENSION DE VAPEUR DU Ce AU DESSUS DE L'ECHANTILLON DU COMBUSTIBLE IRRADIE EN ADMETTANT LA VAPORISATION DE $CeO_2$.

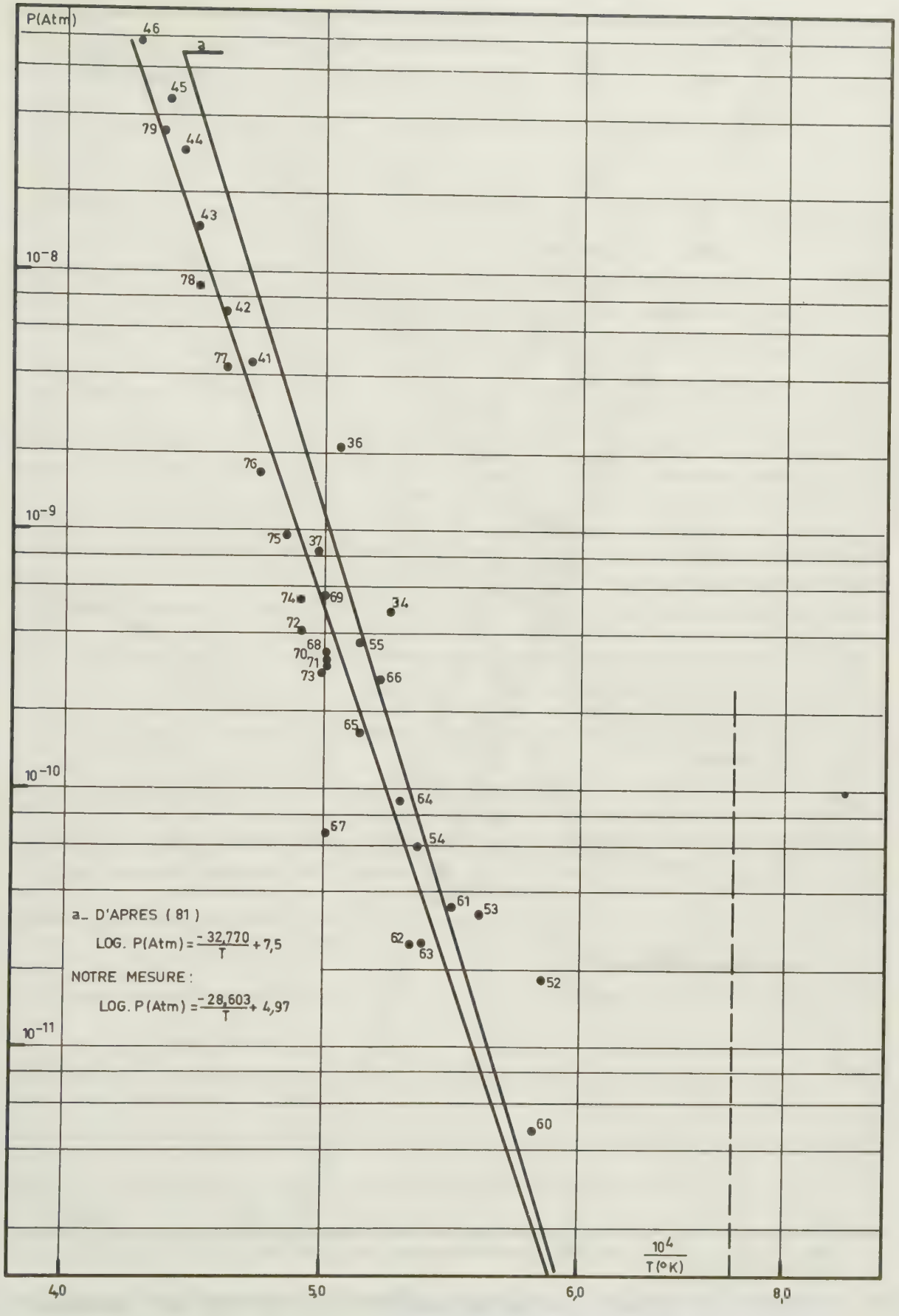



Fig.33 - TENSION DE VAPEURS DE Ru (METAL) AU-DESSUS DE L'ECHANTILLON DE COMBUSTIBLE IRRADIE.

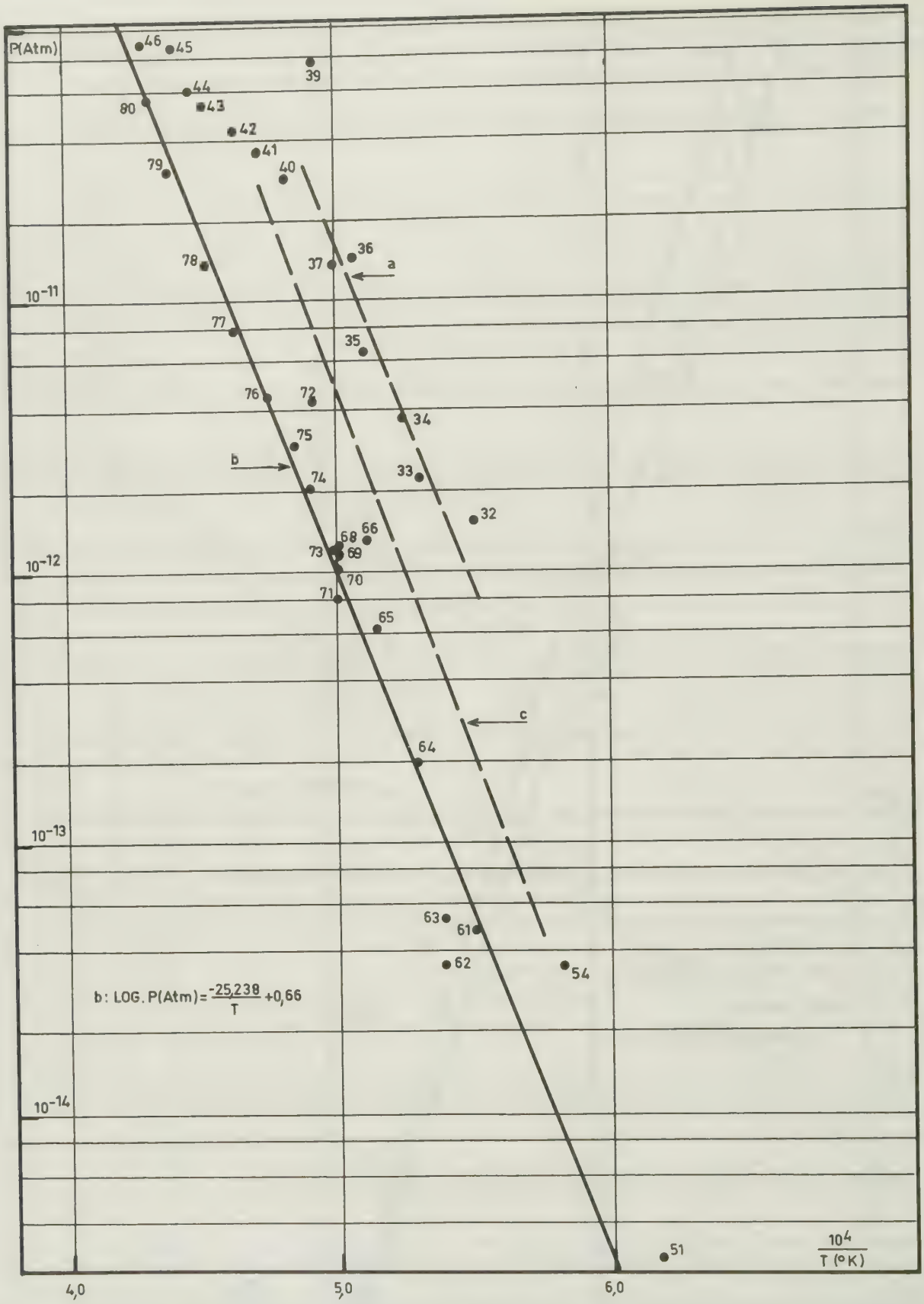



Fig.34 _TENSION DE VAPEUR DE Nb-95 AU DESSUS DU COMBUSTIBLE IRRADIE (a) ET (b). (c) EST LA COURBE OBTENUE DANS LES MESURES DU SYSTEME $ZrO_2$.

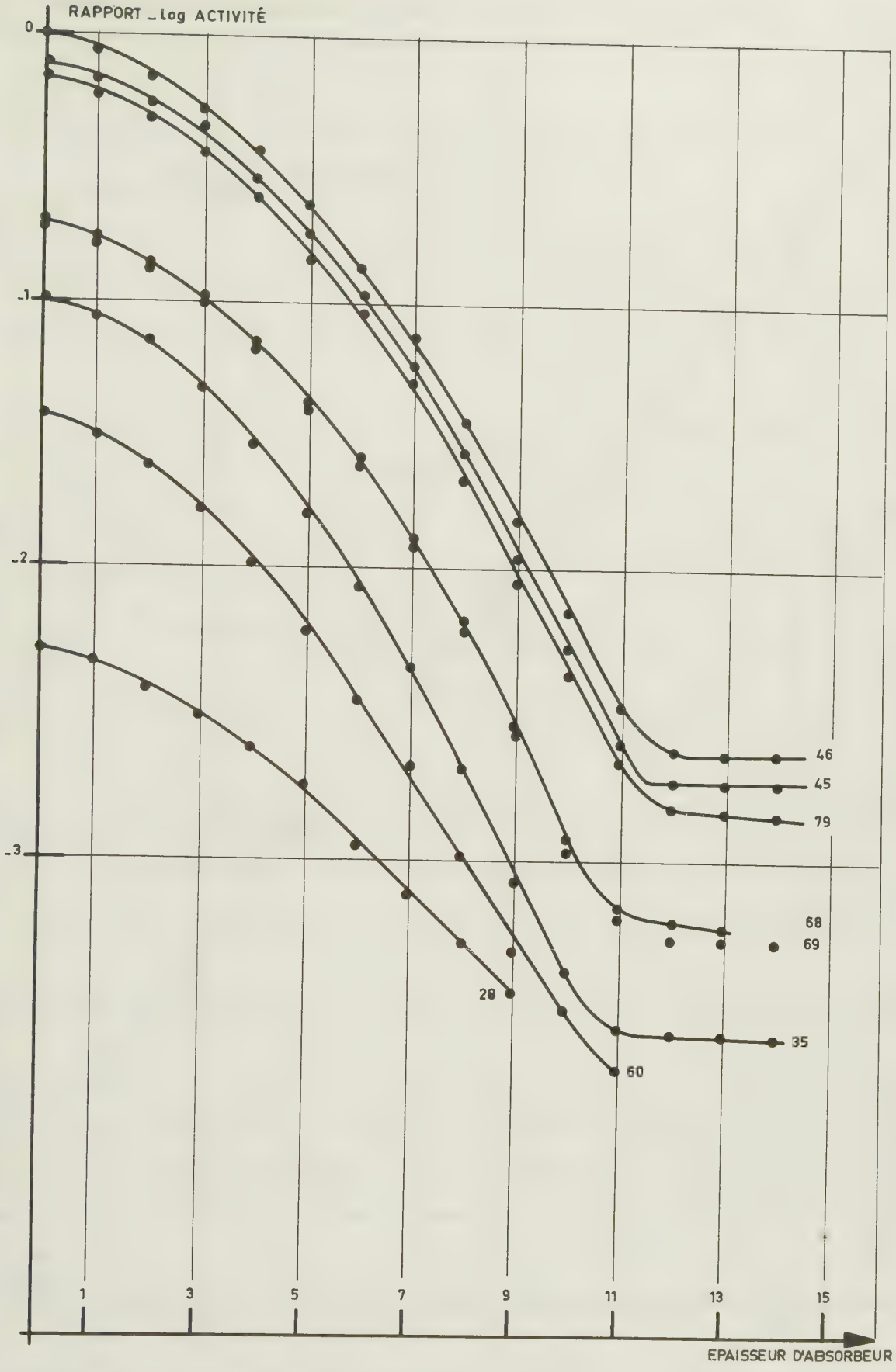



Fig.35 _VARIATION DE L'INTENSITE DU RAYONNEMENT β DES CIBLES D'EVAPO_ RATION EN FONCTION DE L'EPAISSEUR D'UN ABSORBEUR EN ALUMINIUM PLACE ENTRE SOURCE ET DETECTEUR. L'UNITE D'EPAISSEUR D'ABSORBEUR CORRESPOND A 133,5 mg/cm$^2$

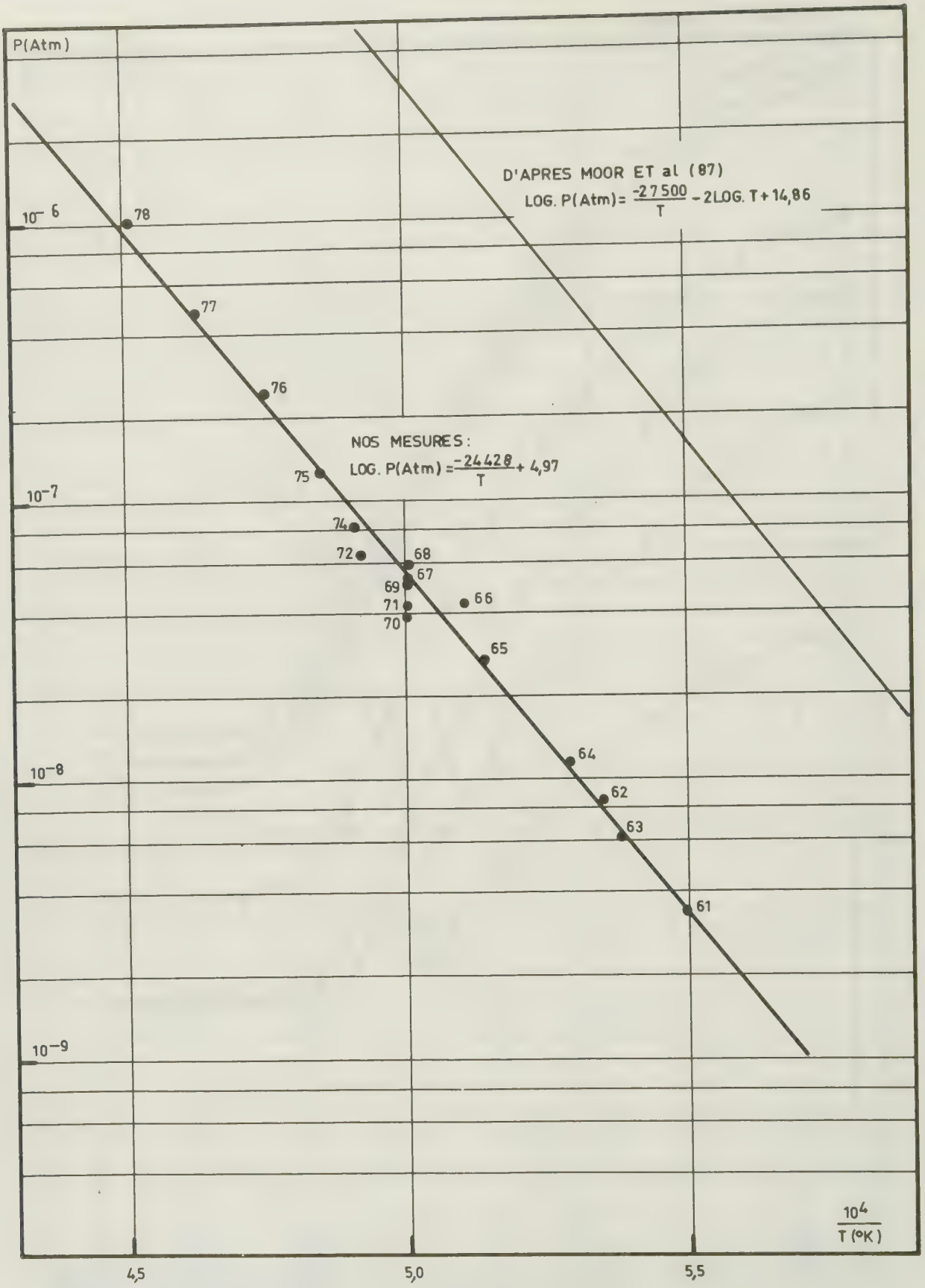
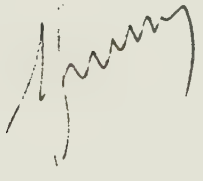



Fig.36 _TENSION DE VAPEUR DU Sr AU-DESSUS DU COMBUSTIBLE IRRADIE, DETERMINE D'APRES L'ACTIVITE $\beta$ DE Y-90 EN ADMETTANT LA VAPORISATION DE SrO_

Vu et approuvé
ORSAY, le 11 janvier 1971
Le Président de l'Assemblée Constitutive
de l'Universite Paris-Sud